

Separation von laserinduzierten- ultraschnellen  
Transporteffekten  
und  
Spin-Flip-Streuung  
in Co/Cu(001)

Eine schichtdickenabhängige Magnetisierungsprofilanalyse mittels  
magnetooptischen Methoden

Von der Fakultät für Physik  
der Universität Duisburg-Essen genehmigte

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften

(Dr. rer. nat.)

von

Jens Wieczorek

aus Bottrop

---

---

Die vorliegende Arbeit wurde zwischen Februar 2010 und Juli 2015 in der Gruppe von Uwe Bovensiepen an der Universität Duisburg-Essen angefertigt.

Bottrop, November 2015

Erstgutachter: Prof. Dr. Uwe Bovensiepen

Zweitgutachter: Prof. Dr. Martin Aeschlimann,

Prüfer: Prof. Dr. Claus M. Schneider

Vorsitzender der Prüfungskommission: Prot. Dr. Jürgen König

Tag der mündlichen Prüfung: 12. November 2015

---

## **Erklärung**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig ohne unzulässige Hilfe Dritter und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche explizit kenntlich gemacht. Die vorliegende Arbeit wurde weder im Aus- noch im Inland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Bottrop, Juli 2015



# Kurzfassung

Zielsetzung dieser Arbeit ist die Erforschung von laserinduzierter Magnetisierungsdynamik auf Piko- und Subpikosekunden-Zeitskalen von ferromagnetischen Materialien, insbesondere die Separation der wirkenden Mechanismen und deren zeitliches Auftreten nach der Laseranregung. Hierfür wurde die schichtdickenabhängige Spindynamik von Co/Cu(001) mit Hilfe des magnetooptischen Kerreffekts (MOKE) und der Erzeugung der zweiten optischen Harmonischen (SHG) untersucht. Zur Interpretation der Messungen wurde eine neuartige Analysemethode entwickelt.

Um Rückschlüsse über die dominierenden Mechanismen der Magnetisierungsdynamik zu bekommen, werden theoretische Betrachtungen und Simulationen gemacht und die Auswirkungen der Mechanismen auf das Magnetisierungsprofil untersucht. Als Mechanismus werden Spin-Flip-Streuung und spinpolarisierter Transport untersucht, die derzeit kontrovers in der Forschung diskutiert werden. Durch die Betrachtungen und Simulationen ergeben sich Magnetisierungsprofile für die Mechanismen, die sich fundamental voneinander unterscheiden. Spin-Flip-Streuung führt zu einer stärkeren Entmagnetisierung im Bereich der Oberfläche im Vergleich zur Grenzfläche zum Substrat, wohingegen beim spinpolarisiertem Transport auch eine stärkere Entmagnetisierung von grenzflächennahen Bereichen entstehen kann.

Zur Identifizierung der unterschiedlichen Magnetisierungsprofile werden die relativen laserinduzierten Variationen der Kerrrotation und Kerrelliptizität untereinander verglichen. Die Observablen weisen unterschiedliche Tiefensensitivitäten auf und ermöglichen somit eine zeitliche Separation der Magnetisierungsprofile. Für Schichtdicken  $d \geq 10$  nm kann eine stärkere Entmagnetisierung von grenzflächennahen im Vergleich zu oberflächennahen Bereichen, während das elektronische System nicht im thermischen Gleichgewicht ist, identifiziert werden. Nach der Thermalisierung des elektronischen Systems stellt sich ein Magnetisierungsprofil ein, das ein invertiertes Verhalten zeigt. Für  $d < 10$  nm wird dasselbe Verhalten nach der Thermalisierung wie für  $d \geq 10$  nm beobachtet. Durch die Analyse der Magnetisierungsprofile kann spinpolarisierter Transport während der Thermalisierung des elektronischen Systems und Spin-Flip-Streuung nach der Thermalisierung als dominierender Mechanismus der Spindynamik identifiziert werden. Durch Simulation der Magnetisierungsdynamik werden diese Ergebnisse bekräftigt.

Ergänzende zeitaufgelöste SHG-Messungen, in einen Schichtdickenbereich von  $d \leq 4$  nm, erweitern das Verständnis über die wirkenden Mechanismen in der Magnetisierungsdynamik. Für diesen Bereich ist die mittlere freie Weglänge der Elektronen geringer als die Schichtdicke, wodurch der Transport von Elektronen stark beeinflusst wird. Anders als für  $d \geq 10$  nm werden durch Transporteffekte oberflächennahe Bereiche stärker entmagnetisiert als grenzflächennahe Bereiche. Dies wird durch die Analyse der Interferenz von Oberflächen- und Grenzflächensignalen der zweiten Harmonischen gezeigt.



# Abstract

The goal of the present work is the investigation of laser induced magnetization dynamics at pico- and subpico-second timescales in ferromagnetic materials, especially the separation of the acting mechanisms and their transient behaviour. Therefore the thickness dependent magnetization dynamics of Co/Cu(001) are measured with the magneto-optical Kerr effect (MOKE) and the generation of the second harmonic (SHG). For the interpretation a new analysis method was developed.

Theoretical considerations and simulations were performed of the mechanisms and the effects on the magnetic profile in the sample. The mechanism of Spin-Flip scattering and spin polarized transport are investigated, which lead to fundamental difference in the magnetic profiles. These mechanisms are controversially discussed in the recent research. Spin-Flip scattering leads to a stronger demagnetization of areas near the surface than areas at the interface to the substrate, whereas spin polarized transport can lead to a stronger demagnetisation for areas near the interface too.

For the identification of the different magnetic profiles, the relative laser induced variations of the Kerr rotation and Kerr ellipticity are compared. Due to the different depth sensitivities of the observables, the temporal separation of the different kind of profiles is possible. For thicknesses  $d \geq 10$  nm a stronger demagnetisation of areas near the interface compared to areas near the surface is found, when the electronic system is not thermalized. After thermalisation the magnetic profiles is inverted. For  $d < 10$  nm the same behaviour after the thermalisation could be found as for  $d \geq 10$  nm. With this analysis of the magnetic profiles, spin polarized transport, when the electronic system is not thermalized and spin-flip scattering after thermalization were identified as the dominant mechanism for the magnetization dynamics. These results are confirmed with magnetization dynamics simulations.

Additionally time resolved SHG-measurements, in a thickness range of  $d \leq 4$  nm, expand the understanding of the magnetization dynamics. For this range the mean free path of the electrons are smaller than the sample thickness, by which the transport is strongly influenced. Other than for  $d \geq 10$  nm transport effects also demagnetize areas near the surface stronger than areas near the interface. In order to derive this, the interference of the SHG-signals from the surface and the interface was analyzed.



# Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung.....	v
Abstract .....	vii
1. Einleitung.....	1
1.1. Aufbau dieser Arbeit .....	3
2. Ultrakurzzeit Dynamik.....	7
2.1. Dynamik von nichtmagnetischen Systemen .....	7
2.1.1. Zwei-Temperatur-Modell (2TM).....	10
2.2. Magnetisierungsdynamik .....	13
3. Magnetische Profile .....	27
3.1. Spin-Flip-Streuung .....	28
3.1.1. Erweitertes M3TM .....	30
3.2. Spinpolarisierter Transport.....	34
3.2.1. Spinpolarisierte Diffusion .....	38
3.2.2. Dichtefunktionaltheorie.....	43
4. Magnetooptik .....	49
4.1. Magnetooptischer Kerreffekt (MOKE) .....	49

4.2.	Longitudinaler MOKE .....	52
4.3.	Transversaler MOKE.....	54
4.4.	Tiefensensitivitäten.....	55
4.5.	Volumenmaterial .....	60
4.6.	Tiefensensitivitäten für Co/Cu(001).....	65
4.7.	Erzeugung der zweiten Harmonischen.....	68
4.7.1.	Messgröße für laserinduzierte Dynamik .....	71
5.	Experimentelles.....	75
5.1.	Pump-Probe-Schema.....	75
5.1.1.	Einfluss des Kohärenten Artefakts .....	81
5.1.2.	MOKE Signal.....	82
5.2.	Probenpräparation .....	85
6.	Schichtdickenabhängige Spindynamik in Co/Cu(001).....	87
6.1.	Statische Schichtdickenabhängigkeit .....	88
6.2.	Schichtdickenabhängige Dynamik.....	91
6.2.1.	Longitudinale Geometrie.....	92
6.2.2.	Transversale Geometrie.....	103
6.3.	Modellierung .....	106
6.3.1.	Longitudinale Geometrie.....	107

---

6.3.2.	Transversale Geometrie.....	119
6.3.3.	Vergleich mit dem Experiment.....	123
6.4.	Variation der optischen Konstante.....	124
7.	Grenzflächendynamik .....	129
7.1.	Statische Schichtdickenabhängigkeit .....	129
7.1.1.	Adsorption von Restgasmolekülen.....	137
7.2.	Zeitaufgelöste magnetische Messungen der zweiten Harmonischen .....	141
7.2.1.	Variation der optischen Parameter.....	150
8.	Zusammenfassung und Ausblick .....	151
A.	Transiente Reflektion .....	155
	Literaturverzeichnis.....	161
	Veröffentlichungen .....	169
	Danksagung .....	171





# 1. Einleitung

Magnetisierungsdynamik ist ein sehr komplexes Thema und umfasst einen riesigen Bereich von Zeitskalen von einigen Millionen Jahren für die Umkehr des Erdmagnetfeldes [1] bis zu einigen zehn Femtosekunden für die laserinduzierte Entmagnetisierung eines Ferromagneten [2]. Auf welchen Zeitskalen die Dynamik stattfindet hängt dabei von den zugrundeliegenden Wechselwirkungen und dem untersuchten System ab. Die Erforschung der Dynamik verspricht Einsichten über die Wechselwirkungen, dies ist von großem Interesse für die Grundlagenforschung und der Entwicklung von neuen Technologien. Die unterschiedlichen zeitlichen Bereiche der Dynamik umfassen dabei keine scharfen Bereiche, sondern können sich über einige Größenordnungen ausdehnen. Das zu untersuchende System hat hierauf einen entscheidenden Einfluss. Zum Beispiel hängt die thermische, zufällige Magnetisierungsumkehr von uniaxialen magnetischen Partikeln von mehreren Faktoren ab, wie dem magnetischen Moment der Partikel, der magnetischen Anisotropie und der Temperatur [3], dies ist entscheidend für die Informationstechnologie. Derzeit werden Informationen in einer Festplatte durch unterschiedliche Magnetisierungsrichtungen in einer magnetischen Scheibe realisiert, wobei die Richtungen jeweils ein Bit, also „0“ oder „1“, repräsentieren. Die Größe der magnetischen Domänen kann dabei nicht beliebig weit reduziert werden, da ansonsten eine spontane Magnetisierungsumkehr stattfinden kann, dies kann zum Datenverlust führt. Um zu gewährleisten, dass Daten auf einer Festplatte über Jahrzehnte erhalten bleiben, ist daher die Größe der Domänen auf einige Nanometer limitiert. Ein weiterer wichtiger Mechanismus in der Informationstechnologie ist die kohärente Präzession von Magnetisierung in einem extremen Magnetfeld. Die Geschwindigkeit, mit der die Magnetisierungsumkehr stattfindet, hängt von der Stärke und der Dauer des Pulses ab, jedoch unterliegt dies Limitierungen. Tudosa et al. [4] zeigten, dass für Magnetfeldpulse mit einer Dauer unter 2 ps keine deterministische Magnetisierungsumkehr mehr stattfindet. Um diese Limitierung zu überwinden werden neue Konzepte und Theorien benötigt. Die Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen verspricht diese Limitierung zu unterschreiten. Zum

Beispiel konnte in ferrimagnetischen Systemen eine transiente ferromagnetische Anordnung der magnetischen Momente, über einige hundert Femtosekunden, durch die Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls erreicht werden [5], was einer Magnetisierungsumkehr entspricht. Jedoch ist die kommerzielle Nutzung noch nicht erreicht, die unterliegenden Mechanismen der ultraschnellen Spindynamik sind noch nicht vollkommen verstanden und werden derzeit kontrovers in der Wissenschaft diskutiert. Damit ist die Magnetisierungsdynamik auf ultraschnellen Zeitskalen sehr interessant für die Grundlagenforschung. Die Erforschung verspricht neue Einsichten in grundlegenden Wechselwirkungen der Magnetisierung wie der Spin-Bahn-Kopplung und der Austauschwechselwirkung [3]. Die Spin-Bahn-Kopplung ist die Wechselwirkung zwischen dem magnetischen Moment der Spins und dem Bahndrehimpuls eines Elektrons. Die Austauschwechselwirkung ist für die magnetische Ordnung in magnetischen Systemen verantwortlich und entsteht durch die Coulombkraft und dem Pauli-Prinzip. Die Dynamik dieser Prozesse liegt im Piko- und Subpikosekundenbereich und ermöglicht neue Einsichten in den Transfer von Drehimpuls auf diesen Zeitskalen. Der Transfer von Drehimpuls ist eine zentrale Rolle in der ultraschnellen Magnetisierungsdynamik.

Ein weiterer Aspekt der ultraschnellen Magnetisierungsdynamik sind Transporteeffekte. Durch die Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls werden starke Gradienten von angeregten Elektronen im Material aufgrund der endlichen Eindringtiefe des Lichtes angeregt, wodurch Elektronenströme erzeugt werden [6-8]. In magnetischen Materialien ist dieser Strom aufgrund der unterschiedlichen Bandstruktur von Majoritäts- und Minoritätselektronen spinpolarisiert [3, 6-8]. Der Spinstrom bietet ein großes Potential für die Forschung. Wie lange bzw. über welche Strecken bleibt die Spinpolarisation erhalten? Wie verhält sich der Strom an einer Grenzfläche? Auch sehr interessant ist, dass aufgrund der Spinpolarisation eine Verschiebung von Drehimpuls stattfindet [6, 9, 10]. Dies bietet die Möglichkeit, auf ultraschnellen Zeitskalen Drehimpuls räumlich zu transportieren [8]. Ein besseres Verständnis der Transporteeffekte könnte zu neuen Technologien führen, womit sich die Spintronik beschäftigt. Durch den Spin steht ein neuer Freiheitsgrad zusätzlich zur Ladung zur Verfügung, welcher in der Informationstechnologie verwendet werden kann.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der ultraschnellen Magnetisierungsdynamik nach der Anregung mit einem Laserpuls, speziell mit der Separation von Transfer und Transport von Drehimpuls. Die zentrale Fragestellung dieser Arbeit ist: **In welchem Maße und zu welchem Zeitpunkt nach der Laseranregung tragen Transfer und Transport zur Magnetisierungsdynamik bei?** Hierfür wurde eine neue Analysemethode des magnetooptischen Signals entwickelt, die unterschiedliche Arten von Magnetisierungsprofilen unterscheiden kann und es damit ermöglicht Rückschlüsse über die wirkenden Mechanismen zu bekommen. Weiterhin wurde ein Modell entwickelt, um die laserinduzierte Magnetisierungsdynamik zu simulieren, welches Transfer- und Transportbeiträge mit berücksichtigt. Das Modell ermöglicht die Simulation der räumlichen und zeitlichen Entwicklung der Magnetisierung nach der Laseranregung, mit dem die magnetooptische Antwort berechnet werden kann. Das Modell reproduziert die wesentlichen Ergebnisse der Messungen.

### 1.1. Aufbau dieser Arbeit

Im **Kapitel 2** werden Konzepte, Modelle und Experimente der ultraschnellen Dynamik nach der Anregung mit einem Femtosekunden-Laserpuls vorgestellt. Der erste Teil des Kapitels beschäftigt sich mit der Dynamik von nichtmagnetischen und der zweite Teil mit magnetischen Systemen. Es wird ein Überblick bis zum aktuellen Stand der Forschung der Magnetisierungsdynamik gegeben.

**Kapitel 3** beschäftigt sich mit dem Thema **Magnetische Profile**. Hier wird analysiert, welche Profile für die unterschiedlichen mikroskopischen Mechanismen nach der Laseranregung entstehen. Profile, verursacht durch eine Spin-Flip-Streuung und spinpolarisierten Transport, unterscheiden sich fundamental voneinander und können mittels Profilanalyse analysiert werden. Für beide Mechanismen wird jeweils zuerst eine allgemeine Betrachtung gemacht und anschließend ein Modell vorgestellt, das zur Modellierung verwendet wurde. Zur

Modellierung des Spin-Flip-Mechanismus wird eine Erweiterung des M3TM von Koopmans et al. [11] und für den spinpolarisierten Transport ein spinpolarisiertes Diffusionsmodell (SDM) verwendet. Die Erweiterung des M3TM und das SDM wurden in Rahmen dieser Arbeit entwickelt.

**Kapitel 4** befasst sich mit der *Magnetooptik*, welche zur Detektion der Spindynamik verwendet wird. Anfänglich wird der magnetooptische Kerreffekt vorgestellt, welcher die Reflektion von elektromagnetischer Strahlung von einer magnetischen Oberfläche beschreibt. Abhängig von der verwendeten Geometrie, siehe Abbildung 4.1, entsteht ein magnetischer Kontrast  $\delta_k$  bei einer Magnetisierungsumkehr oder eine Polarisationsänderung bei der Reflektion. Bei der Polarisationsänderung verschiebt sich die Polarisation von linear zu elliptisch, dies wird durch die Kerrrotation  $\theta$  und die Kerrelliptizität  $\varepsilon$  charakterisiert. Die Observablen des Kerreffekts  $\theta$ ,  $\varepsilon$  und  $\delta_k$ , sind proportional zur Magnetisierung, haben aber jeweils eine unterschiedliche Tiefensensitivität im Vergleich zueinander [12], dies wird zur Profilanalyse ausgenutzt. In diesem Kapitel wird die Tiefensensitivität hergeleitet und anschließend die Sensitivitäten für Co/Cu(001) (das untersuchte System in dieser Arbeit) für unterschiedliche Probendicken berechnet. Nach der Betrachtung des Kerreffektes wird die Erzeugung der optischen zweiten Harmonischen (SHG) vorgestellt. Die SHG beschreibt eine Frequenzverdopplung der elektromagnetischen Strahlung bei der Reflektion und ist grenzflächensensitiv. Die SHG wird zur Detektion von Grenzflächendynamik verwendet.

*Experimentelles* wird in **Kapitel 5** vorgestellt. Der erste Teil des Kapitels beschäftigt sich mit dem verwendeten Lasersystem und dem optischen Aufbau. Es wird erläutert, welche optischen Elemente zur Modifikation des Strahlenganges und Detektion verwendet werden. Im zweiten Teil wird die Probenpräparation von Co/Cu(001) vorgestellt.

**Kapitel 6** umfasst die *Schichtdickenabhängige Spindynamik in Co/Cu(001)*. Es werden die zeitaufgelösten Messungen des magnetooptischen Kerreffektes und ihre Interpretation vorgestellt. Anhand der unterschiedlichen Tiefensensitivitäten der Observablen  $\theta$ ,  $\varepsilon$  und  $\delta_k$  des Kerreffektes werden die Magnetisierungsprofile analysiert. Weiterhin wird zeitlich separiert, welche Mechanismen die Spindynamik dominieren. Während das elektronische System nicht im thermischen Gleichgewicht ist, dominieren Transporteffekte und nach der Thermalisierung nehmen Spin-Flips-Streuungen überhand und beherrschen die Spindynamik.

Diese Interpretation wird durch schichtdickenabhängige Simulation unterstützt, bei denen die Dynamik der magnetischen Profile durch eine Kombination des erweiterten M3TM und des SDM nach der Anregung berechnet wird. Mit den Profilen wird die magneto-optische Antwort des Systems berechnet. Durch die Kombination beider Modelle kann eine Vielzahl der experimentellen Beobachtungen reproduziert und ein vollständiges Bild der Dynamik erhalten werden.

In **Kapitel 7** geht es um die ***Grenzflächendynamik*** von Co/Cu(001). Hierfür werden die Messungen der statischen und zeitaufgelösten Erzeugung der zweiten Harmonischen vorgestellt und analysiert. Durch die statischen Messungen werden zuerst die unterschiedlichen Beiträge der Grenzflächen zum elektrischen Feld der zweiten Harmonischen bestimmt. Die Felder der beiden Grenzflächen können miteinander interferieren, dies ist entscheidend, um die dynamischen Messungen, die anschließend vorgestellt werden, zu interpretieren. Nur durch die Berücksichtigung der Interferenz können die zeitaufgelösten Resultate der Messungen verstanden werden. Hierdurch kann das Bild der Spindynamik, insbesondere der Magnetisierungsprofile, weiter vervollständigt werden.

**Kapitel 8** ist ***Zusammenfassung und Ausblick***. Es werden nochmals die Ergebnisse und Interpretationen zusammengefasst und weitere zukünftig mögliche Experimente vorgeschlagen, die auf der Profilanalyse beruhen.



## 2. Ultrakurzzeit Dynamik

Die Erforschung von laserinduzierter Dynamik kann neue Einsichten in physikalische Prozesse liefern, nicht nur in magnetischen Systemen. Viele der Konzepte und Modelle für die Dynamik von nichtmagnetischen Systemen haben maßgeblich zum Verständnis von Magnetisierungsdynamik beigetragen und werden daher an dieser Stelle vorgestellt. Anschließend wird die Magnetisierungsdynamik diskutiert.

### 2.1. Dynamik von nichtmagnetischen Systemen

Seit der Entwicklung von modengekoppelten Lasersystemen, die ultrakurze Laserpulse mit einer Pulsdauer von einigen zehn Femtosekunden erzeugen [13], ist die Erforschung von ultraschneller laserinduzierter Dynamik, im Piko- und Subpikosekundenbereich, stark vorangeschritten. Von großer Bedeutung bei der Erforschung ist dabei die verwendete Messtechnik. Auf diesen Zeitskalen reichen konventionelle Detektoren nicht aus, um die Dynamik zu detektieren und es wird das sogenannte Pump-Probe-Verfahren verwendet. Bei dieser Technik wird das zu untersuchende System zuerst mit einem ultrakurzen Laserpuls angeregt und anschließend werden die physikalischen Eigenschaften nach einer definierten Verzögerungszeit  $\tau$  abgefragt. Zur Abfrage werden in der Forschung unterschiedlichste Techniken wie X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) [14], Elektronenbeugung [15], Zwei-Photonen-Photoemission (2PPE) [16] und viele mehr verwendet. In dieser Arbeit werden die Eigenschaften mit optischen und magnetooptischen Methoden abgefragt, siehe Kapitel 4. Der verwendete Aufbau dieser Arbeit wird in Kapitel 5.1 vorgestellt.

Physikalische Prozesse auf Piko- und Subpikosekundenzeitskalen erforderten grundlegende neue Konzepte, da die Anregung mit dem Laserpuls so schnell stattfindet, dass sich die angeregten Systeme nicht mehr im thermischen Gleichgewicht befinden und somit die Verwendung von Konzepten der Thermodynamik verhindert oder stark eingeschränkt werden.

In erster Linie werden durch den Laserimpuls Elektronen aufgrund ihres Wirkungsquerschnittes angeregt. Dabei findet die Anregung, für Pulse mit einer Pulsdauer von einigen Femtosekunden, so schnell statt, dass die Verteilung in der Elektronenenergie stark von einer Fermiverteilung abweicht, siehe Abbildung 2.1. Die Elektronen befinden sich nicht im thermischen Gleichgewicht, wodurch dem System keine Temperatur zugeordnet werden kann. Außerhalb des thermischen Gleichgewichts ist keine Temperatur definiert. Durch Streuung der Elektronen untereinander fängt die Energie an sich auf unterschiedliche Energiezustände zu verteilen und es stellt sich eine Fermieverteilung in der Elektronenenergie ein, das elektronische System thermalisiert. Die benötigte Thermalisierungszeit  $\tau_{th}$  hängt von der Streuwahrscheinlichkeit der Elektronen und damit auch vom System ab. Typische Zeiten für 3d-Metalle, wie Kobalt, dessen Dynamik in dieser Arbeit untersucht wird, liegen im Bereich von 100 fs [17]. Nach der Thermalisierung kann eine Temperatur  $T_e$  für das elektronische System definiert werden, welche, abhängig von der Laserfluenz, einige hundert Kelvin erreichen kann, siehe Abbildung 2.2.

Die Dynamik des elektronischen Systems spielt sich auf Zeitskalen der Größenordnungen von hundert Femtosekunden ab. Das Phononische System zeigt aufgrund seiner größeren Massenträgheit eine langsamere Dynamik, die in der Größenordnung von Pikosekunden liegt. Durch Elektron-Phonon-Kopplung wird Energie zwischen dem elektronischen und dem phononischen System ausgetauscht und es werden Gitterschwingungen, Phononen, angeregt. Nach Einstellen einer Bose-Einstein-Verteilung in der Phononenbesetzung kann dem phononischen System ebenfalls eine Temperatur zugeordnet werden. Die Temperaturen des elektronischen und phononischen Systems gleichen sich an. Typische Zeiten  $\tau_{e-ph}$  für das Einstellen einer gemeinsamen Temperatur liegen im Bereich von einigen Pikosekunden, siehe Abbildung 2.2.



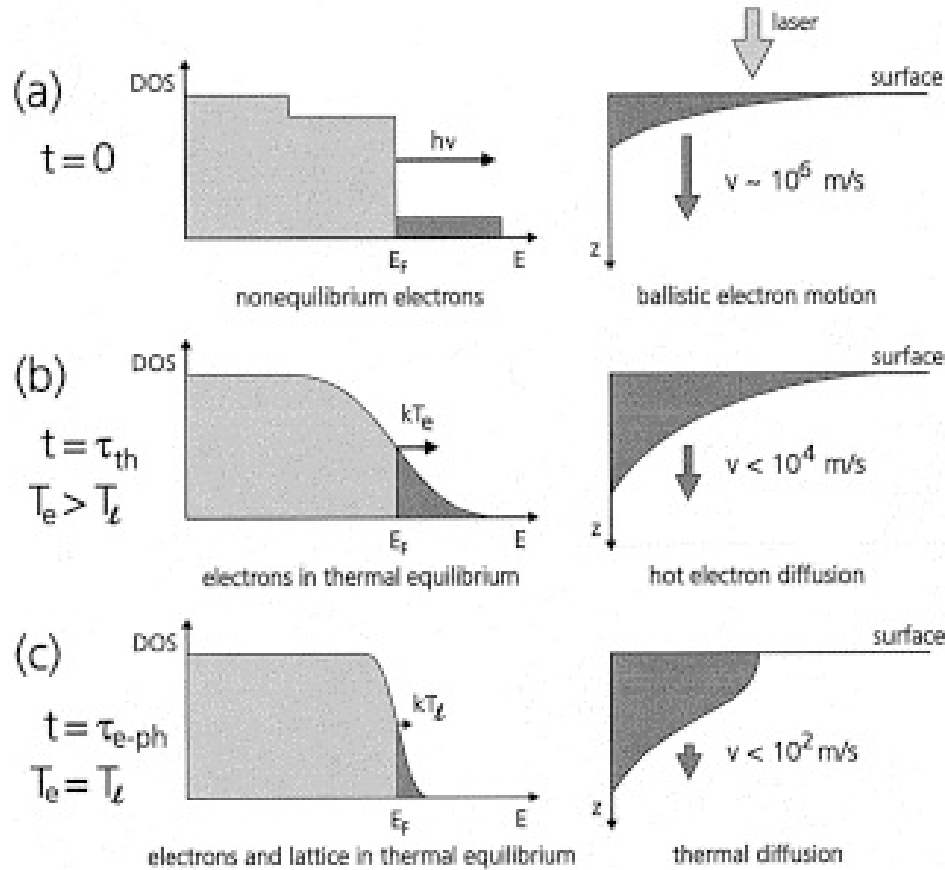


Abbildung 2.1: **Relaxation und Transport auf ultraschnellen Zeitskalen, Abbildung von Hohlfeld et al. [18].** (a) Der Laserpuls erzeugt Elektronen außerhalb des thermischen Gleichgewichts, die sich ballistisch ausbreiten. (b) Durch Elektron-Elektron-Streuung stellt sich eine Fermiverteilung in der Elektronenenergie ein und die Anregung verteilt sich durch Elektronendiffusion. (c) Zwischen dem elektronischen und phononischen System findet durch Elektron-Phonon-Kopplung ein Energietransfer statt und die Temperaturen beider Systeme gleichen sich an. Die Anregung breitet sich anschließend durch thermische Gitterdiffusion aus.

Ein weiterer Aspekt bei der laserinduzierten Dynamik auf ultraschnellen Zeitskalen sind Transporteffekte, siehe Abbildung 2.1. Durch die endliche Eindringtiefe der Laserpulse entsteht ein starker Gradient der Anregung in Material. Die Anregung breitet sich auf Grund des Gradienten aus und die lokale Anregungsdichte nimmt ab, wobei die Transporteffekte stark von dem untersuchten System und den verwendeten Laserpulsen abhängen. Nach der

Anregung ist die Ausbreitung von Elektronen zuerst ballistisch und geht anschließend, während der Thermalisierung des elektronischen Systems, in eine diffusive Ausbreitung über. Nach dem Einstellen eines thermischen Gleichgewichts zwischen dem elektronischen und dem phononischen System breitet sich die Anregung durch thermische Gitterdiffusion aus. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit zwischen den Mechanismen unterscheidet sich um einige Größenordnungen, siehe Abbildung 2.1.

### 2.1.1. Zwei-Temperatur-Modell (2TM)

Ein Modell, das die Dynamik nach der laserinduzierten Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls beschreibt, ist das Zwei-Temperatur-Modell (2TM) [18], siehe Abbildung 2.2. Im 2TM ist das System in zwei Untersysteme eingeteilt, das elektronische und das phononische System, welche jeweils eine eigene Temperatur besitzen. Aufgrund der geringen Wechselwirkung zwischen der elektromagnetischen Strahlung und dem phononischen System wird durch den Laser in erster Linie das elektronische System angeregt [18], wodurch sich dieses aufheizt. Durch Elektronen-Phononen-Kopplung findet ein Energieaustausch zwischen dem elektronischen und phononischen System statt und die Temperaturen beider Systeme gleichen sich an, siehe Abbildung 2.2. Weiterhin kann Energie durch Wärmetransport ins Material abgeführt werden, wobei im 2TM typischerweise nur der elektronische Wärmetransport berücksichtigt wird. Der phononische Wärmetransport ist um einige Größenordnungen langsamer, siehe oben, und kann auf diesen Zeitskalen vernachlässigt werden [18]. Mathematisch kann der Temperaturverlauf des elektronischen und phononischen Systems mit zwei gekoppelten Differentialgleichungen beschrieben werden:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \gamma \cdot T_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \kappa_{el} \cdot \frac{\partial}{\partial z} T_e \right) - g_{el} (T_e - T_l) + S(z, t), \quad (2.1)$$

$$C_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} = g_{el} (T_e - T_l), \quad (2.2)$$

wobei die Indizes e und l Werte bzw. Materialkonstanten des elektronischen und des phononischen Systems kennzeichnen.  $T_j$  ist die Temperatur,  $C_j$  die spezifische Wärmekapazität,  $\gamma$  der elektronische Wärmekapazität-Koeffizient,  $g_{el}$  die Elektronen-Phononen-Kopplungskonstante,  $\kappa_{el} = \kappa \cdot T_e / T_l$  die thermische Leitfähigkeit des elektronischen Systems und  $\kappa$  die thermische Leitfähigkeit (eine empirische Materialkonstante). Die räumliche und zeitliche Anregung mit dem Laserpuls wird durch den Quellterm  $S(z, t)$  beschrieben. Formel (2.1) kann über die Beziehung  $\kappa_{el} = \kappa \cdot T_e / T_l$  zu

$$\frac{\partial T_e^2}{\partial t} = \frac{\kappa}{\gamma T_l} \frac{\partial^2 T_e^2}{\partial z^2} - \frac{2 \cdot g_{el}}{\gamma} (T_e - T_l) + 2 \cdot \frac{S(z, t)}{\gamma} \quad (2.3)$$

umgeschrieben werden [19]. Der homogene Teil der Differentialgleichung entspricht einer eindimensionalen Diffusionsgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} u = D \frac{\partial^2}{\partial z^2} u \quad (2.4)$$

mit  $u = T_e^2$  und den Diffusionskoeffizienten  $D = \kappa / \gamma T_l$ . Mit dem beschriebenen 2TM können transiente Temperaturen für das elektronische und phononische System berechnet werden, siehe Abbildung 2.2.

Hohlfeld et al. [18] konnten zeitaufgelöste Reflektionsmessungen an Gold mit den 2TM gut erklären, aber es gibt auch Kritik an diesem Modell. Im 2TM wird dem elektronischen und dem phononischen System eine wohl definierte Temperatur zugeordnet, dies ist aber nicht immer gewährleistet, wie weiter oben diskutiert.

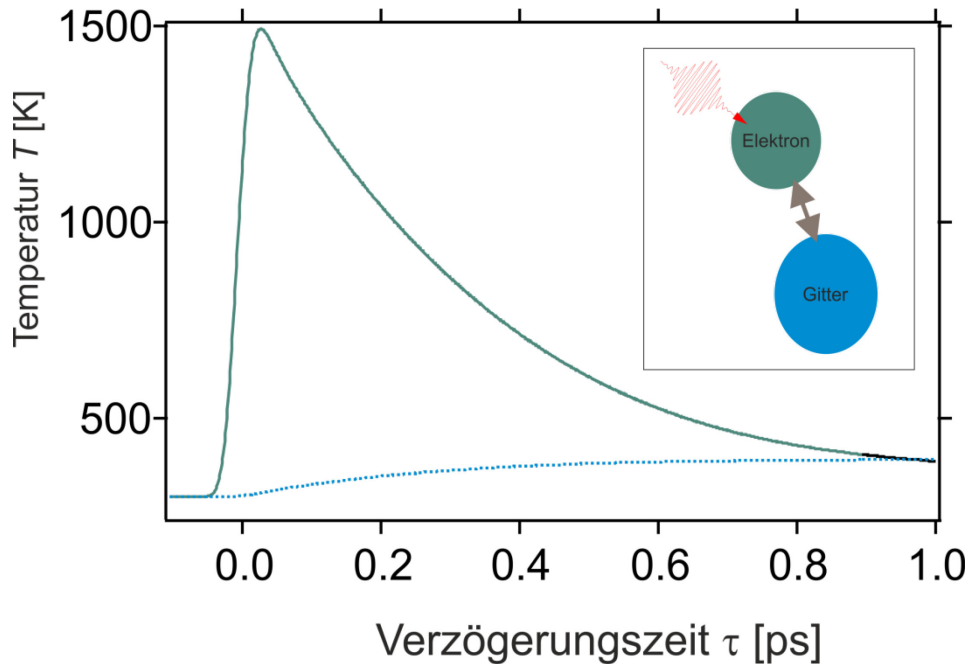


Abbildung 2.2: **Zwei-Temperatur-Modell (2TM)**. (Nebenbild) Darstellung des 2TM, das System ist in zwei Untersysteme, dem elektronischen und dem phononischen System unterteilt. Beide Systeme besitzen eine eigene Temperatur. (Graph) Zeitliche Entwicklung der Elektronen- (grüne durchgezogene Kurze) und Gittertemperatur (blaue gestrichelte Kurve) von der Oberfläche von Co/Cu. In den Berechnungen wurde das Kupfersubstrat implementiert, siehe Kapitel 3.1.1, die Dicke der Kobaltschicht beträgt  $d = 20$  nm. Für verwendete Parameter siehe Tabelle 3.1

## 2.2. Magnetisierungsdynamik

Für magnetische Systeme muss noch ein weiterer Freiheitsgrad, die Magnetisierung, mit berücksichtigt werden, die zu einer Vielzahl von Effekten und Dynamik führt. Die Erforschung dieser Dynamik verspricht grundlegende Erkenntnisse über die zugrunde liegenden Wechselwirkungen zu erhalten. In Abbildung 2.3 sind die Wechselwirkungen auf einer Zeitskala graphisch dargestellt, auf der typische Dynamik stattfinden. Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Dynamik und deren Anregung auf kürzeren Zeitskalen von Nanosekunden bis zu Femtosekunden, insbesondere mit der ultrakurzen Dynamik im zeitlichen Bereich von Piko- und Subpikosekunden.

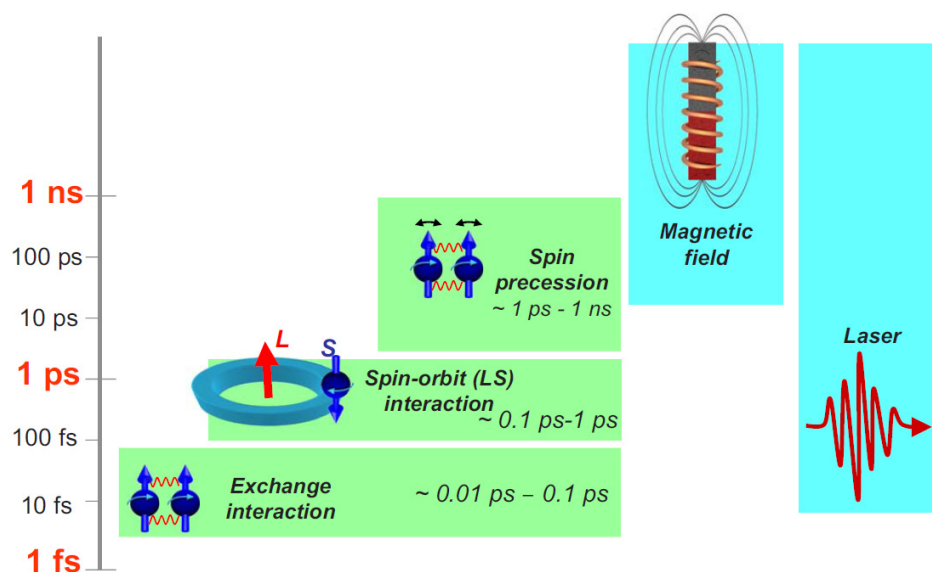


Abbildung 2.3: **Magnetisierungsdynamik**, Abbildung von Kirilyuk et. al. [20]. Auf der Zeitskala sind Wechselwirkungen in einem magnetischen System und typische Zeiten der Magnetisierungsdynamiken dargestellt.

Eine Möglichkeit die Magnetisierung in einem System zu modifizieren, ist das Anlegen eines Magnetfeldes  $H$ , dabei wird durch das Magnetfeld ein Drehmoment auf die Magnetisierung ausgeübt und die Richtung der Magnetisierung verändert. Die zeitliche Veränderung der Magnetisierung  $\vec{M}$  wird durch die Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung (LLG) [3]

$$\frac{dm}{dt} = \gamma[m \times H] + \frac{\alpha}{m} \left[ m \times \frac{dm}{dt} \right] \quad (2.5)$$

beschrieben, wobei  $\vec{m} = \vec{M}/M_0$  die normierte Magnetisierung,  $M_0$  der Betrag der Gleichgewichtsmagnetisierung,  $\alpha$  ein phänomenologischer Dämpfungsparameter und  $\gamma$  das gyromagnetische Verhältnis ist.  $\gamma$  ist ein Proportionalitätsfaktor zwischen dem Drehimpuls (oder Spins) eines Teilchens und seines magnetischen Momentes. Typische Zeiten dieser Dynamik sind durch die Larmorfrequenz  $\omega_L$  gegeben. Die Larmorfrequenz  $\omega_L$  ist die Frequenz, mit der die Magnetisierung um die Magnetfeldrichtung präzessiert. Für den Elektronenspin in einem Magnetfeld mit der Stärke von 1 T beträgt  $\omega_L = 1,759 \cdot 10^{11}$  rad/s. Das entspricht einer Periodendauer von 36 ps. Zur Modifikation auf kurzen Zeitskalen werden auch Magnetfeldpulse verwendet, dies ist von großer Bedeutung in der Informationstechnologie, siehe Kapitel 1. In Festplatten zum Beispiel wird durch Magnetfeldpulse die Magnetisierungsrichtung umgekehrt.

Eine weitere Möglichkeit Magnetisierungsdynamik auszulösen ist die Anregung des Systems mit einem Laserpuls. Die ersten Arbeiten hierzu stammten von Vaterlaus et al. [21, 22], wobei eine Eisen- und eine Gadoliniumprobe durch einen Pumpuls mit einer Pulsdauer von 10 ns angeregt wurde. Anschließend wurde die Magnetisierung mit einem 60 ps langen Probepuls mittels zeitaufgelöster spinpolarisierter Photoemission abgefragt. In dieser Arbeit hatten Vaterlaus et al. [21, 22] die Relaxationszeit  $\tau_{sl}$  zwischen dem magnetischen und phononischen System bestimmt, welche über die Spin-Bahn-Wechselwirkung vermittelt wird. Die Messungen ergaben  $\tau_{sl} = 100 \pm 80$  ps für Gadolinium, und für Eisen konnte  $\tau_{sl}$  in einem

zeitlichen Bereich von 20 ns bis 30 ps eingegrenzt werden. Aufgrund der Pumpimpulsdauer von 10 ns ist das elektronische und phononische System während und nach der Anregung durchgehend im thermischen Gleichgewicht, wodurch die Relaxation von Spin-Elektron und Spin-Gitter nicht separiert werden konnte. Die gemessene Relaxationszeit für Gadolinium war in guter Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen von  $\tau_{sl} = 48$  ps von Hübner et al. [23], welche mittels der Spin-Bahn-Wechselwirkung bestimmt wurde.

Der folgende Teil dieses Kapitels beschäftigt sich mit der Magnetisierungsdynamik nach der Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen mit Pulsdauern von der Größenordnung von einigen zehn Femtosekunden. Durch Verwendung dieser geringen Pulsdauer befindet sich das elektronische und phononische System anfänglich nicht im thermischen Gleichgewicht, siehe oben, wodurch eine Erforschung der Wechselwirkung zwischen Spin- und Elektronensystem ermöglicht wird. Ein weiterer wichtiger Aspekt sind Transporteffekte, die durch diese Anregung entstehen. Diese Dynamik ist der zentrale Bestandteil dieser Arbeit.

Als erster hatten Beaurepaire et al. [2] die Dynamik der Magnetisierung nach der Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls untersucht. Nach der Anregung eines 22 nm dicken Nickelfilms mit einem ultrakurzen Pumpimpuls von 60 fs, fiel die remanente Magnetisierung innerhalb von 1 ps über ca. 50% und regenerierte sich innerhalb von 15 ps lediglich um ca. 10%. Zur Detektion wurden im Pump-Probe-Verfahren (siehe oben) mit dem magnetooptischen Kerreffekt (MOKE), siehe Kapitel 4.1, Hysteresekurven für unterschiedliche Verzögerungszeiten gemessen. Die Beobachtungen wurden mit einem Drei-Temperatur-Modell (3TM) erklärt, welches eine Erweiterung des Zwei-Temperatur-Modells (2TM) ist, siehe Abbildung 2.2. Dazu wurde das 2TM mit einem dritten Untersystem, dem Magnetischen, erweitert. Das magnetische Untersystem besitzt ebenfalls eine Temperatur  $T_s$  und zwischen den drei Untersystemen kann Energie ausgetauscht werden. Zur Berechnungen der Dynamik wurden die Gleichungen des 2TM erweitert:

$$C_e(T_e) \frac{dT_e}{dt} = -g_{el} \cdot (T_e - T_l) - g_{es} \cdot (T_e - T_s) + S(t), \quad (2.6)$$

$$C_s(T_s) \frac{dT_s}{dt} = -g_{es} \cdot (T_s - T_e) - g_{sl} \cdot (T_s - T_l), \quad (2.7)$$

$$C_l(T_e) \frac{dT_l}{dt} = -g_{el} \cdot (T_l - T_e) - g_{sl} \cdot (T_l - T_s), \quad (2.8)$$

wobei  $g_{es}$  und  $g_{sl}$  Konstanten sind, die den Transfer von Energie zwischen Spin-Elektron bzw. Spin-Gitter beschreiben. Die Konstante  $C_s$  ist die magnetische Wärmekapazität. Die räumliche Anregung durch die Laserpulse und die räumliche Ausbreitung der Temperaturverteilung wurde von Beaurepaire et. al. [2] vernachlässigt.

Mit dem 3TM konnten Beaurepaire et al. [2] den zeitlichen Verlauf von  $T_e$  und  $T_s$  aus den Messungen qualitativ gut reproduzieren, siehe Abbildung 2.4. Die experimentelle Temperatur  $T_s$  wurde aus der statischen Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung  $M(T)$  und  $T_e$  aus zeitaufgelösten Transmissionsmessungen bestimmt.

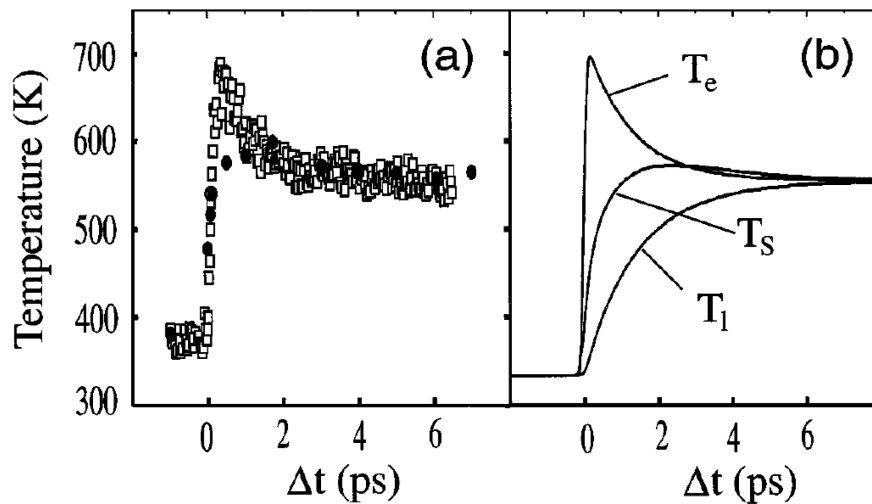


Abbildung 2.4: **Transiente Temperaturen in Nickel, Abbildung von Beaurepaire et. al. [2].** (a) Experimentell bestimmte Temperatur des elektronischen (Vierecke) und magnetischen (Kreise) Systems nach der Laseranregung. (b) Berechnete Temperaturen nach dem Drei-Temperatur-Modell (3TM).



Diese Ergebnisse hatten zu vielen kontroversen Diskussionen geführt, da unklar war und immer noch ist, wie Drehimpuls, also Magnetisierung, auf diesen Zeitskalen transferiert bzw. transportiert werden kann. Es gibt mehrere Ansätze, die diese Fragestellung unterschiedlich lösen oder nicht beachten. Es entstanden phänomenologische Theorien, die keinen expliziten Transfer des Drehimpulses enthalten, wie das 3TM von Beaurepaire et al [2], siehe oben, oder Modelle, die auf der Landau-Lifshitz-Gleichung basieren [24, 25], siehe Gleichung (2.5). Weitere Theorien lösen das Problem der Drehimpulserhaltung durch einen Transfer zu einem anderen System. Durch Streuung von Quasiteilchen findet dabei der Transfer statt. Es wurden Elektron-Elektron-, Elektron-Phonon- und Elektron-Magnon-Streuung betrachtet [26-35]. Auch photoinduzierter Spin-Flip wurde als Mechanismus der ultraschnellen Spindynamik vorgeschlagen. Dabei wird der nötige Drehimpuls für einen Spin-Flip von den Photonen der anregenden Laserpulse geliefert. Jedoch ist dieser Mechanismus stark umstritten, da der transferierte Drehimpuls durch die Anzahl von absorbierten Photonen nicht ausreicht, um die gemessene Entmagnetisierung zu erklären [29, 36]. Außerdem müsste die Dynamik nach dem zeitlichen Auftreten des Pumpimpulses stoppen, dies ist nicht der Fall. Experimentelle Befunde von Eschenlohr et al. [37], die weiter unten vorgestellt werden, sprechen ebenfalls gegen diesen Mechanismus. Im Laufe der Zeit hat sich noch ein weiterer zusätzlicher Ansatz gebildet, bei dem kein Transfer vom Drehimpuls stattfindet, sondern eine räumliche Umverteilung der Magnetisierung, welche im Signal detektiert wird [6, 9, 10]. Momentan ist noch nicht eindeutig bestimmt, in welchem System welcher Mechanismus zu welchem Zeitpunkt zur Dynamik beiträgt.

Ein Modell, um die laserinduzierte Magnetisierungsdynamik zu erklären, das mikroskopische Drei Temperatur Modell (M3TM) , wurde von Koopmans et al. [11] entwickelt, siehe Abbildung 2.5. Dieses Modell wird kontrovers diskutiert und ist von großer Relevanz in der Forschung. Das M3TM ist eine Erweiterung des 3TM [2], siehe oben, mit einem expliziten Drehimpulstransferkanal. Im M3TM ist das System ebenfalls in drei Untersysteme, dem elektronischen, dem phononischen und dem magnetischen System unterteilt, zwischen denen Energie ausgetauscht wird. Der Drehimpulstransfer im M3TM wird durch Elektron-Phonon-

Streuung vom Typ Elliot-Yafet-Streuung vermittelt. Basierend auf diesem Drehimpulskanal lässt sich die zeitliche Änderung der normierten Magnetisierung  $m$  mit

$$\frac{\partial m_{\text{M3TM}}}{\partial t} = R \cdot m \cdot \frac{T_l}{T_c} \left( 1 - m \cdot \coth \left( m \cdot \frac{T_c}{T_e} \right) \right) \quad (2.9)$$

berechnen, wobei  $R \propto T_c^2/\mu$  eine Materialkonstante,  $\mu$  das atomare magnetische Moment und  $T_c$  die Curie-Temperatur ist. Die Temperaturen  $T_e$  und  $T_l$  werden mit den 2TM berechnet, siehe Kapitel 2.1.1. Nach den M3TM tragen hoch angeregte Elektronen, die nicht thermalisiert sind, nicht merklich zur Dynamik bei. Durch diese Beschreibung konnten Koopmans et al. [11] zwei Klassen von Magnetisierungsdynamiken identifizieren, wobei das Verhältnis  $T_c/\mu$  eine entscheidende Rolle spielt, siehe Abbildung 2.5. Die erste Klasse von Magnetisierungsdynamik beschreibt die Dynamik von starker Kopplung zwischen dem elektronischen und magnetischen System, d.h. großes  $R$ . Bei dieser Klasse findet die Entmagnetisierung in einem einzelnen Zeitschritt statt und das System fängt innerhalb der Thermalisierungszeit  $\tau_{\text{el}}$  zwischen elektronischen und phononischen System wieder an zu regenerieren. Die Magnetisierung folgt dem elektronischen System. In der zweiten Klasse mit geringer Kopplung, d.h. kleines  $R$ , ist die Entmagnetisierung ineffektiv und findet innerhalb von  $\tau_{\text{el}}$  nicht vollständig statt. Dies führt zu einer Entmagnetisierung in zwei Zeitschritten, einem schnellen innerhalb von  $\tau_{\text{el}}$  in der Größenordnung von hundert fs und einem langsamen in der Größenordnung von einigen ps nach  $\tau_{\text{el}}$ , siehe Abbildung 2.5. Der zweite Zeitschritt folgt der Gitterdynamik. In welcher Klasse die Magnetisierungsdynamik stattfindet hängt vom System und der verwendeten Fluenz der Pumppulse ab, auch eine Mischung aus beiden ist möglich.

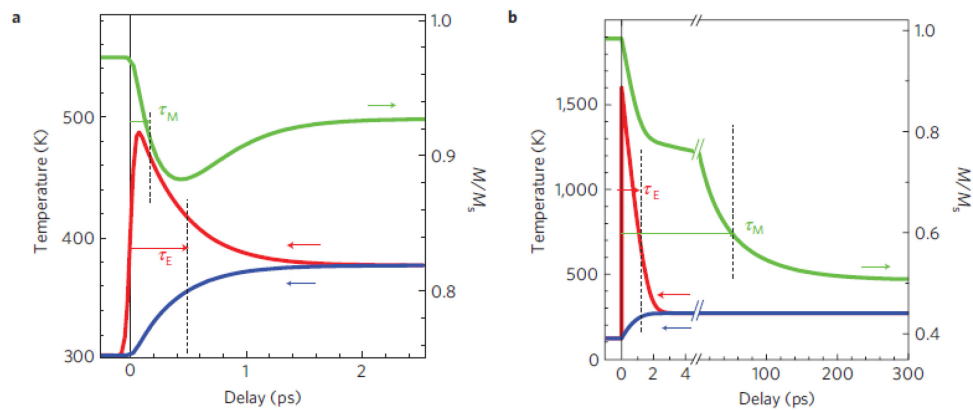


Abbildung 2.5: **Mikroskopisches Drei Temperatur Modell (M3TM), Abbildung von Koopmans et al. [11].** (a,b) Transiente Temperatur des elektronischen (blau), phononischen (rot) und magnetischen (grün) Systems nach der Laseranregung für Nickel (a) und Gadolinium (b). In Nickel findet die Entmagnetisierung in einem Zeitschritt und in Gadolinium in zwei Zeitschritten statt.

Diese beiden Klassen von Magnetisierungsdynamiken wurden in Experimenten gefunden. Übergangsmetalle wie Kobalt, Nickel und Eisen [11, 27, 30, 38] zeigen typischerweise ein Verhalten der ersten Klasse und Seltene Erden wie Gadolinium und Terbium [14, 39] der zweiten Klasse. Damit führte Koopmans et al. die Dynamik von Übergangsmetallen und Seltenen Erden auf die Elektron-Phonon-Streuung zurück.

Jedoch ist der von Koopmans et al. [11] vorgeschlagene Mechanismus zum Transfer vom Drehimpuls basierend auf Elliot-Yafet-Streuung umstritten. Theoretische Berechnungen von Carva et al. [40] besagen, dass die Spin-Flip-Rate nicht ausreicht, um die beobachteten Entmagnetisierungen zu erklären.

Weiterhin konnte Eschenlohr et al. [14] an Gadolinium-Terbium-Legierungen  $Gd_{x-1}Tb_x$  zeigen, dass die zwei zeitlichen Schritte in der Entmagnetisierung nicht vom gleichen Mechanismus verursacht werden. In den Legierungen wurden zwei Schritte in der Entmagnetisierung nach der Anregung gemessen, wobei der erste schnelle Schritt weitestgehend unabhängig von der Terbiumkonzentration  $x$  innerhalb einer ps stattfand. Der zweite Entmagnetisierungsschritt hingegen variierte von 33 zu 9 ps mit steigender

Terbiumkonzentration  $x$  von 0 bis 0,7. Dieses Verhalten konnte auf die elektronische Struktur und den Wechselwirkungen zurückgeführt werden. Gadolinium und Terbium gehören zu den Seltenen Erden und der dominierende Anteil des magnetischen Momentes wird durch die partiell gefüllten, am Ort der Ionenrumpfe lokalisierten,  $4f$ -Zustände der Elektronen getragen. Die Austauschwechselwirkung wird über spinpolarisierte  $5d$ -Elektronen vermittelt. Gadolinium hat ein magnetisches Moment pro Atom von  $\mu_{\text{Gd}} = 7,55 \mu_{\text{B}}$  und Terbium von  $\mu_{\text{Tb}} = 9,34 \mu_{\text{B}}$ , wobei die Abweichungen zu einer ganzen Zahl durch die  $5d$ -Elektronen zustande kommen. Terbium besitzt aufgrund seines größeren Bahndrehimpulses von  $L_{\text{Tb}} = 3$  eine stärkere Spin-Gitter-Kopplung als Gadolinium mit  $L_{\text{Gd}} = 0$ . Der erste Entmagnetisierungsschritt konnte angeregten  $5d$ -Elektronen zugeordnet werden, wohingegen der Zweite durch die Spin-Gitter-Kopplung verursacht wird, welche mit steigendem  $x$  zunimmt.

Die Detektion der Entmagnetisierung gibt einigen Anlass zur Diskussion, insbesondere die Frage, inwieweit die Änderung des magneto-optischen Signals die Magnetisierungsdynamik widerspiegelt. Optische Artefakte, also eine Variation der optischen Parameter, induziert durch die Laseranregung, könnte ebenfalls das Signal beeinflussen. Experimentelle Befunde hatten darauf hingewiesen. Mehrere Arbeitsgruppen hatten das unterschiedliche transiente Verhalten von zwei magnetooptischen Observablen, Kerrrotation  $\theta$  und Kerrelliptizität  $\varepsilon$  (siehe Kapitel 4.1), angeführt [41-43]. Van Kampen [44] konnte diese Unterschiede in den Transienten bis 2 ps nach der Anregung detektieren. Die Messungen wurden an einer 9 nm dicken Nickelschicht auf einem leitfähigen Substrat durchgeführt. Bei Guidoni et al. [42] und Comin et al. [41] bestanden die Unterschiede bis 500 fs nach der Anregung einer ferromagnetischen Schicht  $\text{CoPt}_3$ (21,5 nm) bzw. Co(50 nm). In beiden Arbeiten diente ein Isolator als Substrat. Als Ursache der Unterschiede der Observablen wurden in all diesen Arbeiten optische Artefakte angeführt. Allerdings wurde nicht berücksichtigt, dass Kerrrotation  $\theta$  und Kerrelliptizität  $\varepsilon$  unterschiedliche Tiefensensitivitäten haben [12], siehe Kapitel 4.4. Durch Magnetisierungsprofile können hierdurch ebenfalls unterschiedliche Transienten entstehen, dies ist ein wesentlicher Teil dieser Arbeit. Durch die relativen Unterschiede zwischen den Transienten können Rückschlüsse auf das Magnetisierungsprofil

getroffen werden, siehe Kapitel 6. Der Einfluss von optischen Artefakten wird in Kapitel 6.4 und 7.2.1 diskutiert.

Trotz der Diskussion über den Ursprung der laserinduzierten Änderung des magnetooptischen Signals, ist weitestgehend unumstritten, dass eine ultraschnelle Entmagnetisierung stattfindet. Entmagnetisierung auf subpikosekunden Zeitskalen wurde durch viele unterschiedliche Techniken wie spinaufgelöste Zweiphotonen-Photoemission (2PPE) [45, 46], Röntgenzirkulardichroismus (XMCD) [38, 47] und die Erzeugung der zweiten Harmonischen (Kapitel 4.7) [48], verifiziert.

Für weitere kontroverse Diskussionen über den Ursprung der ultraschnellen Spindynamik sorgten 2010 Battiato et al. [6, 10] mit der Entwicklung der Superdiffusiven-Transport-Theorie. In dieser Theorie findet die Spindynamik nicht durch Spin-Flip-Streuung statt, sondern durch eine räumliche Umverteilung von Spinpolarisation. Die Dynamik der Umverteilung wird dabei durch die Propagation von angeregten Elektronen beschrieben. Die Elektronen bewegen sich nach der Anregung in zufällige Richtungen und können mit anderen Elektronen streuen, wobei die Streuwahrscheinlichkeit über die mittlere freie Weglänge bestimmt wird. Durch die Streuung werden weitere Elektronen angeregt, die wiederum in zufällige Richtungen propagieren und streuen. Es entsteht ein Kaskadeneffekt. Durch diese Beschreibung wird der Übergang von ballistischer zur diffusiver Ausbreitung beschrieben und die Thermalisierung des elektronischen Systems ist implizit enthalten. Die Umverteilung der Magnetisierung ergibt sich bei dieser Betrachtung durch die physikalischen Eigenschaften des Ferromagneten. Bedingt durch die Ausspaltung der Bandstruktur von Majoritäts- und Minoritätselektronen in einem Ferromagneten, besitzen angeregte Elektronen unterschiedliche mittlere freie Weglängen für unterschiedliche Spinrichtungen. Typischerweise ist die mittlere freie Weglänge von Majoritätselektronen größer als für Minoritätselektronen und somit haben Majoritätselektronen eine größere Mobilität [6]. Daraus folgt, dass Majoritätselektronen nach der Anregung schneller den angeregten Bereich verlassen können und damit Magnetisierung räumlich umverteilt wird. Elektronen besitzen aufgrund ihres Spins ein magnetisches Moment. In Abbildung 2.6 sind die berechneten Umverteilungen der angeregten Elektronen und der Magnetisierungen für zwei 10 nm dicke Nickelschichten nach der Superdiffusiven-

Transport-Theorie dargestellt. Für die Berechnungen wurde ein leitfähiges (Aluminium: Al) und isolierendes (Magnesiumoxid: MgO) Substrat verwendet, wodurch eine unterschiedlich Dynamik entstehen. Für isolierende Substrate können die angeregten Elektronen die ferromagnetische Schicht nicht verlassen, jedoch findet eine Umverteilung der Spinpolarisation von Bereichen nahe der Oberfläche zu Bereichen nahe den Substrat statt. Aufgrund der endlichen Eindringtiefe von Licht in Materie, führt diese Umverteilung zu einer Reduktion des magnetooptischen Signals, mit dem die Magnetisierung gemessen wird, siehe Abbildung 2.6.

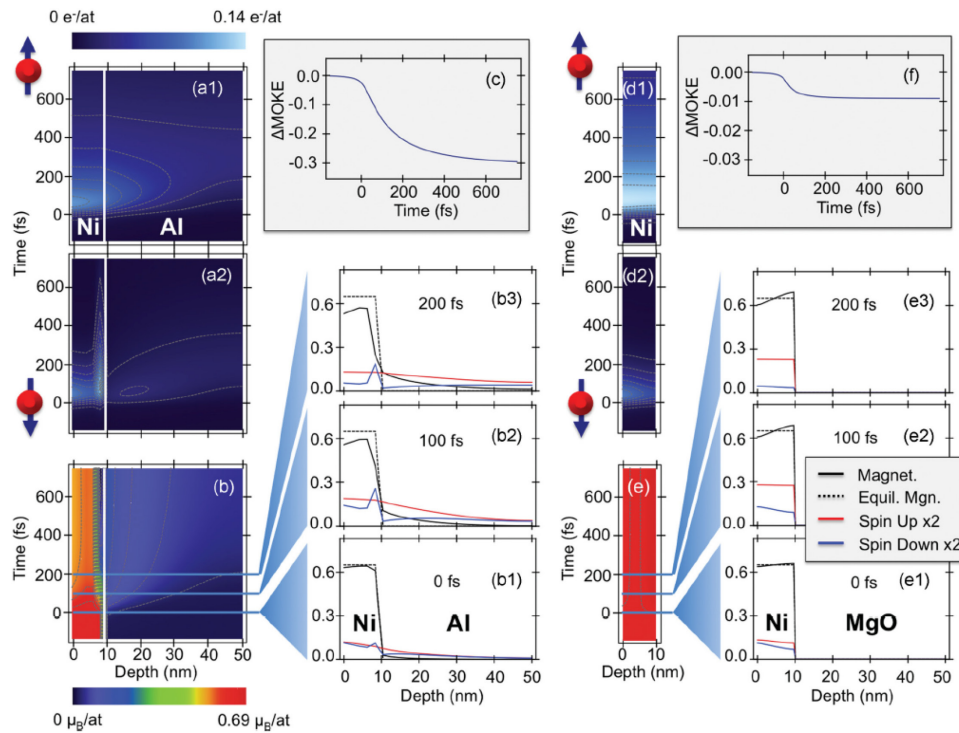


Abbildung 2.6: **Superdiffusiven-Transport-Theorie, Abbildung von Battiato et. at. [10].** Laserinduzierte Dynamik einer Nickelschicht auf einem leitfähigen (linke Seite, Aluminium) und isolierenden (rechte Seite, Magnesiumoxid) Substrat. (Falschfarben) Zeitliche Entwicklung der Dichte angeregter Majoritäts- (oben), Minoritätselektronen (mitte) und der Magnetisierung (unten). (Graphen) Räumliche Profile für unterschiedliche Zeiten und die zeitliche Entwicklung des magnetooptischen Signals.

Für leitfähige Substrate können die angeregten Elektronen die ferromagnetische Schicht verlassen und es kann Spinpolarisation in das Substrat abtransportiert werden, siehe Abbildung 2.6. Ein weiterer Effekt ist noch zusätzlich durch das Substrat gegeben. Elektronen, die im Substrat angeregt werden, können in die ferromagnetische Schicht zurückgestreut werden und sich dort weiter ausbreiten. Aufgrund der geringeren mittleren freien Weglänge von Minoritäts- im Vergleich zu Majoritätselektronen findet eine Akkumulation von Minoritätselektronen nahe der Grenzfläche statt. Majoritätselektronen können weiter in die Schicht propagieren als Minoritätselektronen. Dies führt zu einer verstärkten Entmagnetisierung der Grenzfläche zum Substrat, siehe Abbildung 2.6. Durch diesen Mechanismus entsteht ein Magnetisierungsprofil, das Bereiche nahe der Grenzfläche stärker entmagnetisiert als Bereiche nahe der Oberfläche. Dieses Resultat ist von entscheidender Bedeutung für diese Arbeit. Durch eine neue Analysemethode des magnetooptischen Signals können verschiedene Arten von Magnetisierungsprofilen identifiziert und Rückschlüsse über die wirkenden Mechanismen geschlossen werden, siehe Kapitle 6.

Entfacht durch die Entwicklung der Superdiffusiven-Transport-Theorie ist die Erforschung von spinpolarisiertem Transport stark voran getrieben worden und es wurde eine Vielzahl von Experimenten entwickelt, die eindeutige Signaturen von Transporteffekten aufzeigen.

Melnikov et al. [7] regten in einer ferromagnetischen Eisenschicht (15 nm) einen Spinstrom an, der durch 50 nm bzw. 100 nm dicke Goldschichten propagierte und auf der Rückseite detektiert werden konnte. Zur Detektion wurde die Erzeugung der optischen zweiten Harmonischen verwendet. Kampfrath et al. [49] gelangten ebenfalls die laserinduzierte Anregung und Propagation eines Spinstroms in einer nichtmagnetischen Schicht in unterschiedlichen Systemen. Die Systeme bestanden jeweils aus einer Eisenschicht auf einer Ruthenium- bzw. Goldschicht. Der Spinstrom führte zur Emission von THz-Strahlung, die charakteristisch für die jeweilige nichtmagnetische Schicht ist.

Eschenlohr et al. [37] wählten einen anderen Ansatz zur Erforschung von Transporteffekten in der Magnetisierungsdynamik. Durch die Erzeugung von nichtthermalisierten, unpolarisierten Elektronen in einer Goldschicht gelang eine Entmagnetisierung in Nickel. Zum Erreichen des Nickelsubstrats mussten die Elektronen dazu durch die Goldschicht propagieren. Zur Detektion der Entmagnetisierung wurden XMCD-Messungen und zur Interpretation wurden Simulationen mit der Superdiffusiven-Transport-Theorie durchgeführt, welche die Dynamik korrekt wiedergaben. Durch diesen Ansatz konnte ebenfalls der photoinduzierte Spin-Flip als Ursache der beobachteten Magnetisierungsdynamik ausgeschlossen werden.

Spinpolarisierter Transport kann nicht nur zu einer Entmagnetisierung, sondern auch zu einer Aufmagnetisierung führen, wie Rudolf et al [8] gezeigt haben. Dazu wurden zeitaufgelöste magnetooptische Kerrmessungen, im XUV-Spektralbereich und in der transversalen Geometrie (Abbildung 4.1) an Ta(3 nm)/Fe(4 nm)/Ru(1,7 nm)/Ni(5 nm)/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> durchgeführt. Durch die Wahl der Wellenlänge war eine elementspezifische Detektion der Spindynamik der Eisen- und Nickelschicht möglich und es wurde ein Anstieg des Kerrsignals von der Eischicht detektiert. Zur Interpretation wurden Simulationen mit der Superdiffusiven-Transport-Theorie durchgeführt, die die beobachtete Magnetisierungsdynamik korrekt wiedergaben. In Eisen angeregte Majoritätselektronen propagierten dabei durch die Rutheniumschicht und führten zu einem Anstieg der Magnetisierung in der Nickelschicht.

Schellekens et al. [50] konnten den Anstieg der Magnetisierung in einem sehr ähnlichen System mit Kerrmessungen in der longitudinalen Geometrie (Abbildung 4.1) nicht verifizieren. Dazu wurde das transiente Verhalten von Projektionen des komplexen Kerrwinkels in der komplexen Ebene analysiert. Schellekens et al. [50] identifizierten Projektionen, die proportional zu der Magnetisierung der Nickelschicht sind und eine Separation möglich machte. Der Grund für das unterschiedliche transiente Verhalten ist nicht bekannt.

Viele experimentelle Befunde konnten auf spinpolarisierten Transport zurückgeführt werden, jedoch kann dieser nicht alleine für die Spindynamik verantwortlich sein. Schellekens et al [51] zeigten, dass in einer Nickelschicht auf einen Saphirsubstrat der Transport eine



untergeordnete Rolle spielt. Dazu wurde die Nickelschicht durch einen ultrakurzen Laserpuls angeregt und die Variation des MOKE-Signals von der Vorder- und Rückseite der Nickelschicht gemessen. An beiden Seiten der Schicht wurde eine Reduktion des Signals gemessen, welche nicht ausschließlich durch Transporteffekte erklärt werden kann. Für Messungen auf einem Isolator ist der Abtransport von Spinpolarisation in das Substrat ausgeschaltet und es kann nur eine räumliche Umverteilung stattfinden, siehe Abbildung 2.6. Bei einer Umverteilung müsste das magnetische Signal aber auf der Rückseite der Schicht ansteigen und nicht fallen, dies deutet wiederum auf eine Entmagnetisierung durch laserinduzierten Spin-Flip hin.

Dies zeigt, dass die Ursachen der Spindynamik noch nicht vollständig verstanden sind und weiter erforscht werden sollten. Es ist unklar, in welchem Maße und zu welchem Zeitpunkt laserinduzierte Spin-Flips oder spinpolarisierter Transport dominieren. Die vorgestellten Experimente zeigen, dass auch vor allem die Wahl des untersuchten Systems eine Rolle spielt. Für Systeme mit leitfähigen Substraten scheint Transport einen entscheidenden Beitrag zu liefern, aber andere Beiträge können nicht ausgeschlossen werden. Um weitere Einblicke in die laserinduzierte Magnetisierungsdynamik zu erhalten, werden neuartige Experimente und Analysen benötigt. In dieser Arbeit wurde dazu eine neue Analyseverfahren entwickelt, die es ermöglicht, Rückschlüsse über die Form des Magnetisierungsprofils zu treffen, wodurch eine zeitliche Separation der Mechanismen möglich ist, siehe Kapitel 6.



### 3. Magnetische Profile

Um Rückschlüsse über die Mechanismen zu erhalten, die für die Magnetisierungsdynamik nach Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls verantwortlich sind, werden in diesem Abschnitt die Auswirkungen auf das Magnetisierungsprofil, d.h. Inhomogenität der Magnetisierung in der Richtung  $z$  senkrecht zur Probenoberfläche, für unterschiedliche Mechanismen näher betrachtet. Es werden Spin-Flip-Streuung und spinpolarisierter Transport betrachtet, welche derzeit in der Literatur vorwiegend diskutiert werden, siehe Kapitel 2. Photoinduzierter Spin-Flip wird an dieser Stelle auf Grund seiner untergeordneten Rolle in der Magnetisierungsdynamik nicht betrachtet [29, 36, 37], siehe Kapitel 2. Es wird speziell der Fall von dünnen Schichten eines Ferromagneten auf einem leitfähigen Substrat betrachtet, wie es für die untersuchten Proben in dieser Arbeit der Fall ist. Für beide Mechanismen wird jeweils zuerst eine allgemeine Betrachtung gemacht, wodurch deutliche Unterschiede zwischen den Mechanismen erkennbar sind. Anschließend wird für die Mechanismen jeweils ein Modell vorgestellt, das zur Modellierung der zeitaufgelösten Messungen verwendet wird. Für den Fall der Spin-Flip-Streuung wird eine erweiterte Version des mikroskopischen Drei Temperatur Modells (M3TM) [11] und für den spinpolarisierten Transport ein spinpolarisiertes Diffusionsmodell (SDM) vorgestellt. Das Diffusionsmodell besteht aus zwei Diffusionsgleichungen, die auf dem zweiten Fickschen Gesetz basieren und in Anlehnung an die Superdiffusiven-Spintransport-Theorie entwickelt wurden [6, 10].

## 3.1. Spin-Flip-Streuung

Ultraschnelle Magnetisierungsdynamik verursacht durch Spin-Flip-Streuung ist ein in der Literatur heiß diskutierter Mechanismus und im Laufe der Zeit haben sich einige Theorien entwickelt, wie in Kapitel 2 erläutert wurde. An dieser Stelle werden nicht die mikroskopischen Mechanismen diskutiert, sondern die Auswirkungen auf das Magnetisierungsprofil. Es wird lediglich angenommen, dass die Magnetisierung einen Wert anstrebt, der durch die lokalen, transienten Temperaturen des elektronischen und phononischen Systems definiert wird, d.h. die Rate der Spin-Flips ist durch die lokalen, transienten Temperaturen bestimmt, wie zum Beispiel im 3TM und M3TM, siehe Kapitel 2.2. Durch den Laserpuls wird im Bereich der optischen Eindringtiefe Energie in das Material deponiert, wobei die genaue Form des Absorptionsprofils vom System abhängt. Optische Parameter und Interferenzeffekte spielen hierbei eine Rolle [52]. Es ergibt sich eine Verteilung in der Elektronentemperatur  $T_e$  und Phononentemperatur  $T_l$ , mit einem negativen Gradienten  $dT_{e/l}/dz < 0$  ins Material, welche sich durch Wärmeleitung [18] räumlich weiter ausdehnt. In Abbildung 3.1 ist ein typisches Profil von  $T_e$  und  $T_l$  für Co/Cu(001) nach der Laseranregung dargestellt. Die Profile wurde mit einer Erweiterung des Zwei-Temperatur-Modells berechnet, wobei das Kupfersubstrat mit berücksichtigt wurde, siehe Kapitel 3.1.1. Für das untersuchte System Co/Cu(001) ist die Wärmeleitfähigkeit von Kupfer vier mal [53] so hoch wie die von Kobalt, womit die Temperatur im Kupfer schneller abtransportiert wird als in Kobalt und das Kupfersubstrat als Temperatursenke betrachtet werden kann. Die Magnetisierung strebt einen durch die transienten Temperaturen definierten Wert an und folgt diesem. **Es entsteht ein Magnetisierungsprofil, welches oberflächennahe Bereiche stärker entmagnetisiert als oberflächenferne  $dm/dz > 0$ .** In Abbildung 3.1 ist ein typisches Magnetisierungsprofil für Co/Cu(001) dargestellt. Das Profil wurde mit einer Erweiterung des M3TM berechnet, wobei das Kupfersubstrat mit berücksichtigt wurde, siehe Kapitel 3.1.1.

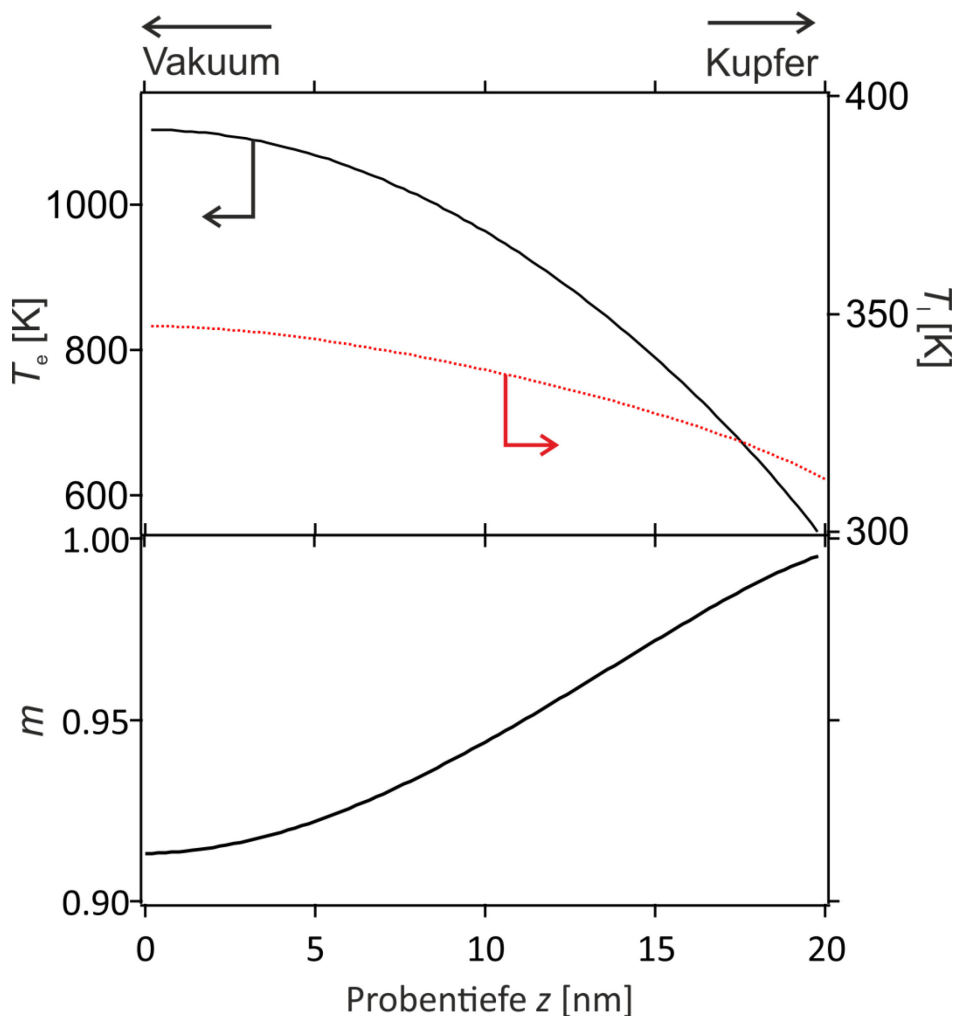


Abbildung 3.1: **Tiefenabhängigkeit der Temperaturen und der Magnetisierung für Co/Cu(001).** (a) Typisches Profil für die Elektronentemperatur (schwarze durchgezogene Kurve) und Phononentemperatur (rote gestrichelte Kurve) berechnet mit dem 2TM für  $\tau = 170$  fs. (b) Normiertes Magnetisierungsprofil berechnet mit dem erweiterten M3TM [11] für  $\tau = 170$  fs. In den Modellen ist das Kupfersubstrat implementiert und stellt eine Temperatursenke dar. Die Profile wurden für eine Schichtdicke von  $d = 20$  nm berechnet, wobei die Oberfläche bei  $z = 0$  nm und die Grenzfläche zum Substrat bei  $z = 20$  nm liegt. Für verwendete Parameter siehe Tabelle 3.1. Die transiente Schichtdickenabhängigkeit des Mechanismus wird im Kapitel 6 diskutiert.

In den vorherigen Betrachtungen wurde kein expliziter Mechanismus für die Spin-Flip-Streuung angenommen. Um eine quantitative Aussage der Magnetisierungsprofile zu treffen,

wird in dieser Arbeit eine Erweiterung des M3TM verwendet, welches im Folgenden vorgestellt wird. Mit dem M3TM wurde die laserinduzierte Magnetisierungsdynamik in Kobalt quantitativ gut reproduziert [11], weswegen davon ausgegangen wird, dass die berechneten Magnetisierungsprofile in derselben Größenordnung liegen wie die experimentellen Profile.

#### 3.1.1. Erweitertes M3TM

Im Folgenden werden die Erweiterung (eM3TM) des M3TM von Koopmans et al. [11], siehe Kapitel 2, vorgestellt, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und zur Simulation der Magnetisierungsdynamik verwendet wurden.

Zur Berechnung der Magnetisierung werden im M3TM zuerst die transienten Temperaturen des elektronischen und phononischen Systems mit dem 2TM berechnet, siehe Kapitel 2.1.1. Die erste Erweiterung, die im Rahmen dieser Arbeit vorgenommen wurde, ist die Berücksichtigung des Substrates im 2TM. Dies wurde anhand eines Sprungs in den Materialkonstanten implementiert. Die Differenzialgleichung der phononischen Temperatur  $T_l$ , siehe Gleichung (2.2), besitzt keine Ortsableitung und wird von dem Sprung in den Parametern nicht beeinflusst. Die Gleichung der elektronischen Temperatur  $T_e$  hingegen hängt von den Gradienten der Temperatur ab und der Sprung an der Grenzfläche muss mit berücksichtigt werden. Dazu wurde die Diffusionsgleichung der elektronischen Temperatur in eine Diffusionsgleichung mit einem ortsabhängigen Diffusionskoeffizienten  $D = D(z) = \kappa/\gamma T_l$  umgeschrieben [54]. Die Gleichungen des 2TM ergeben sich damit zu

$$\frac{\partial T_e^2}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{\kappa_i}{\gamma_i T_l} \frac{\partial T_e^2}{\partial z} \right) - \frac{2 \cdot g_{el,i}}{\gamma_i} \cdot (T_e - T_l) + 2 \cdot \frac{S_i(z, t)}{\gamma}, \quad (3.1)$$

$$C_{l,i}(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} = g_{el,i} \cdot (T_e - T_l), \quad (3.2)$$

wobei  $C_{l,i}$  die phononische Wärmekapazität,  $\gamma_i$  der Wärmekapazität-Koeffizient,  $g_{el,i}$  die Elektronen-Phononen-Kopplungskonstante und  $\kappa_i$  die thermische Leitfähigkeit ist. Der Index  $i$  steht für die Schicht bzw. für das Substrat. Die räumliche und zeitliche Anregung mit dem Laserpuls wird durch den Quellterm

$$S_i(z, t) = A_i \cdot G(t) \cdot \exp\left(-z/\delta_{skin,i}\right) \quad (3.3)$$

mit

$$A_i = \frac{F_{abs,i}}{\delta_{skin,i} \cdot (1 - \exp(-d_i/\delta_{skin,i}))} \quad (3.4)$$

beschrieben, wobei räumlich eine exponentielle Dämpfung mit der Skintiefe  $\delta_{skin,i}$  und zeitlich eine Gaußfunktion  $G(t)$  angenommen wird. Der Vorfaktor  $A_i$  dient zur Normierung der absorbierten Energie, wobei  $F_{abs,i}$  die absorbierte Fluenz und  $d_i$  die Probendicke ist. Für das Substrat ist  $d_{Cu} = \infty$ .

Die Temperaturen  $T_e(z, t)$  und  $T_l(z, t)$  sind zeit- und ortsabhängige Größen, wodurch mit den 2TM transiente Temperaturprofile für das elektronische und phononische System berechnet werden können, siehe Abbildung 3.1. Das Kupfersubstrat in Co/Cu(001) hat dabei, aufgrund seiner guten Wärmeleitung, einen merklichen Einfluss auf die Dynamik nach der laserinduzierten Anregung. Die Wärmeleitfähigkeit von Kupfer ist viermal [53] so hoch wie

die von Kobalt und stellt somit eine Energiesenke dar. Mit wachsender Kobaltschichtdicke  $d$  wird die Distanz zur Energiesenke größer und die Energie der Anregung verweilt länger in der Kobaltschicht und beeinflusst länger die Magnetisierungsdynamik. Die zeitliche Schichtdickenabhängigkeit wird in Kapitel 6 ausführlich betrachtet.

Das Computerprogramm zur Berechnung des 2TM ist im Rahmen der Diplomarbeit von Herrn D. Denzler [19] in Kooperation mit J. Hohlfeld [18] an der FU-Berlin und die Erweiterung bezüglich des Substrates in einer Kooperation mit Herrn Boris Weidtmann von der Universität Duisburg-Essen entstanden.

Mit den berechneten transienten Temperaturprofilen der Systeme des 2TM und der Formel

$$\frac{\partial m_{M3TM}}{\partial t} = R \cdot m \cdot \frac{T_l}{T_c} \left( 1 - m \cdot \coth \left( m \cdot \frac{T_c}{T_e} \right) \right) \quad (3.5)$$

des M3TM kann die zeitliche und räumliche Entwicklung der Magnetisierung berechnet werden, wobei  $R$  eine Materialkonstante und  $T_c$  die Curie-Temperatur ist, siehe Kapitel 2.2.

Bei der Berechnung von  $\partial m_{M3TM} / \partial t$  wurde die Thermalisierungszeit des elektronischen Systems nicht berücksichtigt, jedoch wird ein nicht zu vernachlässigbarer Beitrag durch spinpolarisierten Transport von nicht thermalisierten Elektronen verursacht, siehe Kapitel 2. Das Ziel dieser Arbeit ist die Separation von Transport- und Transfereffekten. Das macht eine Berücksichtigung der Thermalisierung erforderlich. Im Rahmen dieser Arbeit wurde aus diesem Grund Formel (3.5) mit einer Funktion  $n_{\text{Therm}}(t)$  multipliziert:

$$\frac{\partial m_{eM3TM}}{\partial t} = n_{\text{therm}}(t) \cdot \frac{\partial m_{M3TM}}{\partial t}, \quad (3.6)$$



wobei das e für Erweitertes steht. Die Funktion  $n_{\text{therm}}(t)$  gibt den Prozentsatz der thermalisierten Elektronen von den angeregten Elektronen an. Zur Berechnung wurde ein System von zwei Zuständen mit nichtthermalisierten und thermalisierten Elektronen angenommen. Durch den Laserpuls werden Elektronen in dem Zustand der nichtthermalisierten Elektronen angeregt, die anschließend mit der Thermalisierungszeit  $\tau_{\text{therm}}$  in dem Zustand der thermalisierten Elektronen relaxieren. Zur Berechnung von  $n_{\text{therm}}$  wurden Ratengleichungen verwendet:

$$\frac{dn_{\text{nontherm}}}{dt} = G(t) - \frac{n_{\text{nontherm}}}{\tau_{\text{therm}}}, \quad (3.7)$$

$$\frac{dn_{\text{therm}}(t)}{dt} = \frac{n_{\text{nontherm}}}{\tau_{\text{therm}}}, \quad (3.8)$$

wobei  $G(t)$  eine normierte Gaußfunktion mit einer Halbwertsbreite von  $\tau = 35$  fs und  $n_{\text{nontherm}}$  der Prozentsatz von nichtthermalisierten, angeregten Elektronen ist. Die Thermalisierungszeit  $\tau_{\text{therm}}$  hängt vom untersuchten System, siehe Kapitel 2, und der absorbierten Fluenz ab. Für Kobalt liegen jedoch keine Werte vor und  $\tau_{\text{therm}}$  wird zur Anpassung der Simulationen an die Experimente verwendet. Für alle Rechnungen dieser Arbeit wurde eine Thermalisierungszeit  $\tau_{\text{therm}} = 150$  fs verwendet, dies ist eine typische Zeit für ein 3d-Metall [17]. Der zeitliche Verlauf von  $n_{\text{therm}}$  ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Ohne die Berücksichtigung der Thermalisierungszeit müsste in den Simulationen für die Anzahl von angeregten Elektronen, die zum Transport beitragen, ein unrealistisch hoher Wert von einigen Elektronen pro Atom gewählt werden, um die Dynamik zu reproduzieren, siehe Kapitel 3.2.1.

In Abbildung 3.1 (unten) ist ein typisches Magnetisierungsprofil von Co/Cu(001) nach diesem Modell dargestellt. Für die Berechnung wurde eine Schichtdicke  $d = 20$  nm und eine Verzögerungszeit  $\tau = 170$  fs gewählt. Das Magnetisierungsprofil zeigt eine stärkere

Entmagnetisierung im oberflächennahen Bereich als an der Grenzfläche, wie von der allgemeinen Betrachtung vorhergesagt. Eine ausführliche Diskussion der Dynamik und der Dickenabhängigkeit wird in Kapitel 6.3 gegeben.

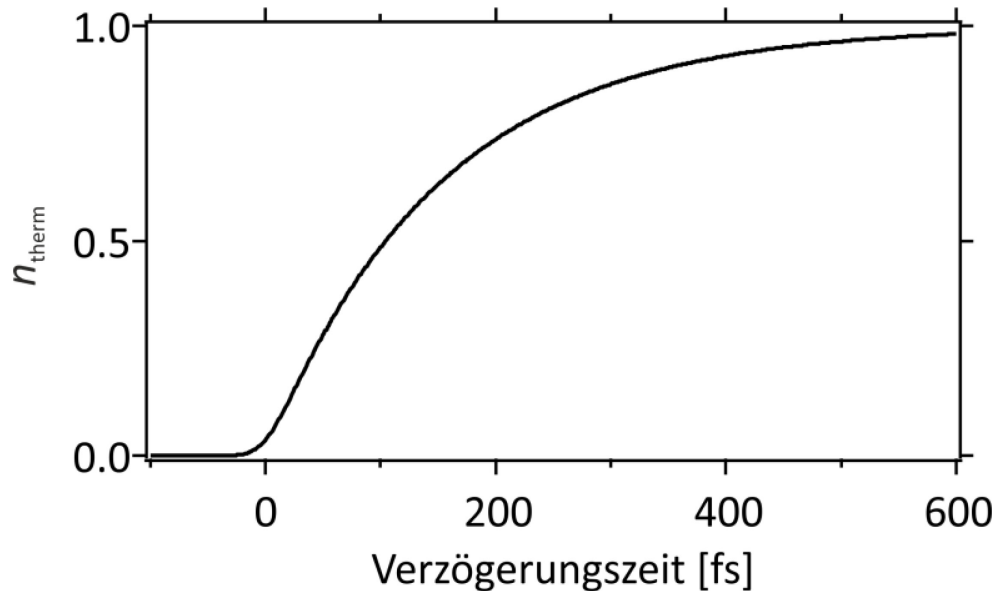


Abbildung 3.2: **Zeitlicher Verlauf von  $n_{\text{therm}}(t)$ .** Die Funktion gibt den Prozentsatz der thermalisierten Elektronen nach der Anregung mit einem Laserpuls an. Es wurde eine Thermalisierungszeit  $\tau = 150$  fs gewählt, was eine typische Zeit für 3d Metalle ist.

## 3.2. Spinpolarisierter Transport

Seit der Entwicklung der Superdiffusiven-Spintransport-Theorie (SST) von Battiato et al. [6, 10], die ausführlich in Kapitel 2.2 diskutiert wurde, ist auch spinpolarisierter Transport ein kontrovers diskutierter Mechanismus der Magnetisierungsdynamik nach Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls. Durch den Transport wird Spinpolarisation räumlich umverteilt und es

entsteht eine inhomogene Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche. Wie im Fall des thermisch getriebenen Spin-Flips wird zuerst eine qualitative Analyse gemacht, die fundamental unterschiedliche Magnetisierungsprofile zur Folge haben kann. Es wird wieder speziell der Fall von dünnen Schichten eines Ferromagneten auf einem leitfähigen Substrat betrachtet.

Am besten lässt sich anhand einer Beispielrechnung der SST verdeutlichen, dass spinpolarisierter Transport zu unterschiedlichen Magnetisierungsprofilen im Vergleich zur Spin-Flip-Streuung führen kann. In Abbildung 2.6 ist die zeitliche Entwicklung der Magnetisierungsprofile für eine 10 nm dicke Nickelschicht auf einem Aluminiumsubstrat nach der SST dargestellt. An der Grenzfläche zum Substrat kommt es innerhalb von ein paar hundert Femtosekunden zu einer Entmagnetisierung, die vier bis fünfmal so stark ist wie die Entmagnetisierung an der Oberfläche. Die verstärkte Entmagnetisierung entsteht durch Elektronen, die im Substrat angeregt werden und in den ferromagnetischen Film zurück gestreut werden und sich in diesem ausbreiten. Aufgrund der geringeren freien Weglänge von Minoritätselektronen streuen diese häufiger nahe der Grenzfläche als Majoritätselektronen. Majoritätselektronen propagieren weiter ins Material, wodurch eine stärkere Akkumulation von Minoritätselektronen an der Grenzfläche entsteht und damit eine Entmagnetisierung zur Folge hat. Inwieweit zurückgestreute Elektronen aus dem Substrat in Co/Cu(001) zur Dynamik beitragen ist unklar, für dieses System liegen keine Rechnungen nach der SST vor und über die Abhängigkeit kann nur spekuliert werden. Kupfer ist ein Edelmetall, wodurch angeregte Elektronen weit ins Substrat propagieren können, bevor sie mit anderen Elektronen streuen. Die gestreuten Elektronen können aber ebenfalls über eine große Wegstrecke propagieren und die Kobaltschicht wieder erreichen. Es liegen keine energieabhängigen Werte für die mittlere freie Weglänge vor um diesen Effekt abzuschätzen. Jedoch könnten die Elektronen zu einer stärkeren Entmagnetisierung der Grenzfläche im Vergleich zur Oberfläche beitragen. Wie im vorherigen Unterkapitel diskutiert wurde, wird diese Form des Magnetisierungsprofils nicht von Spin-Flip-Streuung erwartet, da die Entmagnetisierung den transienten Temperaturverteilungen  $T_e(z, t)$  und  $T_l(z, t)$  folgt.

Weiterhin kann eine verstärkte Entmagnetisierung an der Grenzfläche im Vergleich zur Oberfläche auftreten, wenn der Gradient in der angeregten Elektronenverteilung an der Grenzfläche stärker ist als an der Oberfläche. Durch den Gradient breitet sich die

Elektronenverteilung aus und es werden Elektronen von der Grenzfläche abgeführt. Majoritätselektronen haben in der Regel eine höhere Geschwindigkeit und Lebensdauer als Minoritätselektronen [6], siehe Kapitel 2.2, wodurch Magnetisierung von der Grenzfläche abtransportiert wird und die Grenzfläche entmagnetisiert. Damit dieser Effekt auftritt darf die Schicht nicht zu dick sein, so dass noch Elektronen nahe der Grenzfläche durch den Laserpuls oder durch Streuung angeregt werden. Weiterhin müssen sich die angeregten Elektronen im Substrat schneller ausbreiten als in der ferromagnetischen Schicht, damit diese von der Grenzfläche abtransportiert werden. Um eine Vorstellung über die Größenordnung von diesem Effekt zu erhalten, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein spinpolarisiertes Diffusionsmodell (SDM) entwickelt und die Magnetisierungsdynamik von Co/Cu(001) für die untersuchten Schichtdicken simuliert. Das SDM wird im nächsten Unterkapitel vorgestellt und die schichtdickenabhängigen Simulationen in Kapitel 6.3. Die Simulationen zeigen eine Entmagnetisierung von einigen Prozent an der inneren Grenzfläche zum Kupfersubstrat. In Abbildung 3.3 ist das Magnetisierungsprofil für Co/Co(001) für die Schichtdicke  $d = 20$  nm und eine Zeitverzögerung von  $\tau = 170$  fs nach der Anregung dargestellt. Bereiche nahe der Grenzfläche sind ca. um 20% entmagnetisiert, wohingegen Bereiche nahe der Oberfläche lediglich um ca. 3% entmagnetisiert sind.

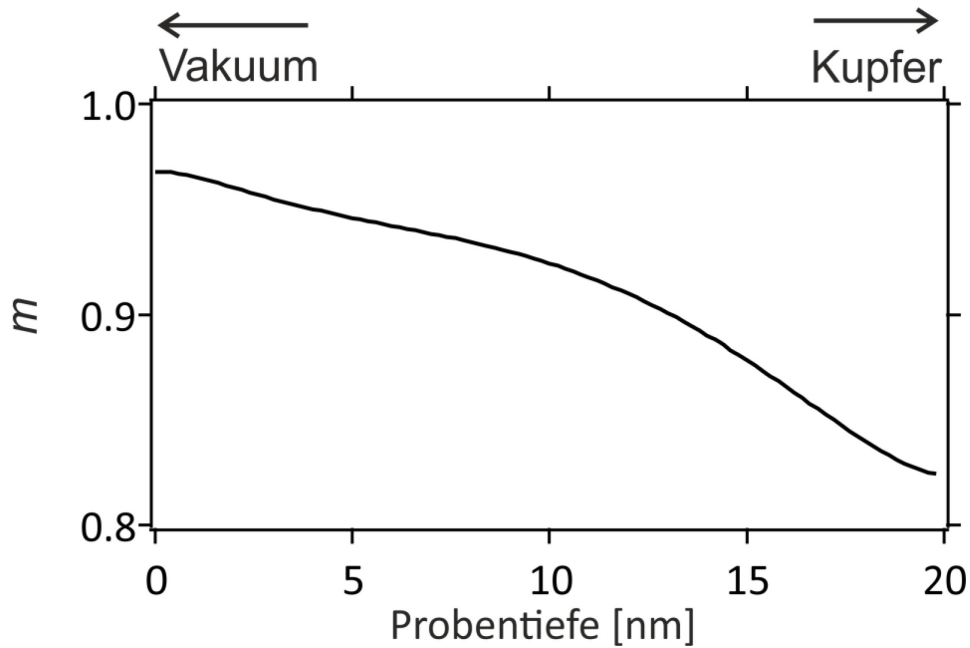


Abbildung 3.3: **Magnetisierungsprofil für spinpolarisierten Transport.** In der Abbildung ist ein typisches, mit dem spinpolarisierten Diffusionsmodell (SDM) berechnetes Magnetisierungsprofil dargestellt. Das Profil zeigt eine stärkere Entmagnetisierung für Bereiche nahe der Grenzfläche ( $z = 20$  nm) als für Bereiche nahe der Oberfläche ( $z = 0$  nm). Das Profil wurde für eine Schichtdicke von  $d = 20$  nm und eine Verzögerungszeit von  $\tau = 170$  fs berechnet. Für verwendete Parameter siehe Tabelle 3.1. Die transiente Schichtdickenabhängigkeit des Mechanismus wird im Kapitel 6 diskutiert.

Diese Betrachtungen führen zu einer verstärkten Entmagnetisierung an der Grenzfläche zum Substrat. Allein damit kann aber keine Aussage über das genaue Profil der Magnetisierung getroffen werden, dafür muss die gesamte Dynamik im System mit berücksichtigt werden. Die Dynamik hängt hierbei von den Parametern des Systems, insbesondere von der Schichtdicke, ab. Die Schichtdicke hat großen Einfluss auf Gradienten im System, da das Substrat als Temperatur-/Spinsenke dient und ist entscheidend für die Dynamik. Weiterhin bestimmt die Schichtdicke, wie oft Elektronen innerhalb dieser streuen können, dies ist entscheidend für die Ausbreitung der Elektronen. Dennoch zeigen diese Überlegungen einen entscheidenden Unterschied im Vergleich zum thermisch getriebenen Spin-Flip: **Eine verstärkte Entmagnetisierung an der Grenzfläche ist durch Transporteffekte möglich,**

**für Spin-Flip-Streuung aber nicht.** Dieser Unterschied macht eine Separation der Mechanismen möglich, siehe Kapitel 6.

Experimentelle Messungen dieser Arbeit zeigen eine stärkere Entmagnetisierung der Grenzfläche im Vergleich zur Oberfläche für  $d \geq 10$  nm und das umgekehrte Verhalten für  $d \leq 4$  nm, siehe Kapitel 6 und 7. Entscheidend für diese Schlussfolgerung ist die schichtdickenabhängige Analyse der Messungen, wie in dieser Arbeit gezeigt wird.

Zur quantitativen Beschreibung der Profile sind umfangreiche Rechnungen notwendig, wie von Battiato et al. in der Referenz [6, 10] gemacht, siehe Abbildung 2.6. In der Abbildung ist deutlich eine verstärkte Akkumulation von Minoritätselektronen an der Grenzfläche zum Substrat zu beobachten. Simulationen mit einer Diffusionsgleichung, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde und im nächsten Kapitel erläutert wird, zeigen qualitativ ähnliche Magnetisierungsprofile, siehe Abbildung 3.3.

#### 3.2.1. Spinpolarisierte Diffusion

Zur Simulation von spinpolarisiertem Transport und um die Auswirkungen auf das magnetooptische Signal zu untersuchen, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Diffusionsgleichung für angeregte Majoritäts- und Minoritätselektronen entwickelt, siehe Gleichung (3.9). Diese Gleichung basiert auf dem Grundgedanken der Superdiffusiven-Transport-Theorie (SST), siehe Kapitel 2.2, aber in einer stark vereinfachten Form. In der Diffusionsgleichung wird der Übergang von ballistischer zur diffusiver Ausbreitung vernachlässigt. Die Generation von angeregten Elektronen durch den Laserpuls und durch Streuprozesse wird in einem Quellterm zusammengefasst. Eine direkte Implementation der vollständigen Theorie hätte den Rahmen dieser Arbeit überschritten. Jedoch kann, trotz der Vereinfachung, mit den Simulationen eine Vielzahl der experimentellen Befunde reproduziert werden, siehe Kapitel 6.3.

In der Diffusionsgleichung (3.9) wird die Erzeugung von angeregten Elektronen durch den Laserpuls und die anschließende Erzeugung von sekundären Elektronen in einem Quellterm  $S(z, t)$  zusammengefasst. Majoritäts- und Minoritätselektronen haben auf Grund der unterschiedlichen Bandstruktur unterschiedliche Mobilitäten, wodurch ein Spinstrom entsteht, der zu einer Umverteilung von Spinpolarisation führt. Die Dynamik dieser Elektronen wird in der Gleichung durch einen Diffusionsterm beschrieben, welcher nach einigen Streueignissen gerechtfertigt ist [10]. Mit der Thermalisierung der Elektronen wird der Spinstrom abklingen [9], dies wird durch einen Zerfallsterm in der Gleichung berücksichtigt. Zur Beschreibung der Dynamik wurde die Differentialgleichung der Diffusion, das zweite Ficksche Gesetz, mit einem Quellterm und einem Abklingterm erweitert:

$$\frac{\partial n_\sigma(z, t)}{\partial t} = D_\sigma \cdot \frac{\partial^2 n_\sigma(z, t)}{\partial z^2} + c_\sigma \cdot S_\sigma(z, t) - \frac{n_\sigma}{\tau_{el}}, \quad (3.9)$$

wobei der Index  $\sigma$  Majoritäts- bzw. Minoritätselektronen repräsentiert,  $D_\sigma$  der Diffusionskoeffizient,  $\tau_{el}$  die Zerfallszeit der angeregten Elektronen und  $c_\sigma$  eine Normierungskonstante ist.

**Im Diffusionsterm** wurde der Diffusionskoeffizient der Selbstdiffusion  $D_\sigma = \frac{1}{3} \cdot v_\sigma \cdot \lambda_\sigma$  verwendet, wobei  $v_\sigma$  die mittlere Geschwindigkeit der Elektronen und  $\lambda_\sigma = v_\sigma \cdot \tau_\sigma$  die mittlere freie Weglänge mit der Lebensdauer  $\tau_\sigma$  ist. Die mittlere Geschwindigkeit  $v_\sigma$  der Elektronen wurde mit Hilfe von Rechnungen der Bandstruktur mittels Dichtefunktionaltheorie bestimmt, Kapitel 3.2.2. Es wurde der Mittelwert bezüglich der Energie der Geschwindigkeitskomponente senkrecht zur Oberfläche in einem Bereich von  $\Delta E = 0,5$  eV oberhalb der Fermienergie verwendet. Innerhalb dieses Energiebereiches variiert die Geschwindigkeit nur sehr schwach und es wurde keine Gewichtung vorgenommen, siehe Abbildung 3.6. Der Laserpuls regt primär Elektronen oberhalb von  $E = 0,5$  eV an, siehe Abbildung 3.5, aber durch die geringe Lebensdauer in Kobalt wird sich nach einigen zehn fs eine Energieverteilung unterhalb dieser Energie einstellen, wodurch die energetische

Mittelung gerechtfertigt wird. Die Lebensdauer  $\tau_\sigma$  wurde aus Referenz [55] entnommen, wobei wieder der energetische Mittelwert gebildet wurde. Die Elektronengeschwindigkeit  $v_\sigma$  und Lebensdauer  $\tau_\sigma$  sind beide spinabhängige Größen, wodurch der Diffusionskoeffizient  $D_\sigma$  ebenfalls vom Spin abhängt.

**Der Quellterm**  $S(z, t) = G(t) \cdot f(z)$  wird zeitlich durch eine Gaußfunktion  $G(t)$  mit einer Halbwertsbreite von 35 fs und räumlich durch die Funktion  $f(z)$  beschrieben. Die Funktion

$$f(z) = \int_0^\infty \exp\left(-\frac{z'}{\delta_{skin}}\right) \cdot \exp\left(-\frac{(z-z')}{\lambda_{ball,\sigma}}\right) dz' \quad (3.10)$$

ist eine Faltung von zwei exponentiellen Funktionen mit den Dämpfungskonstanten  $\delta_{skin}$  und  $\lambda_{ball,\sigma}$ , wobei  $\delta_{skin}$  die optische Eindringtiefe des Lasers und  $\lambda_{ball,\sigma}$  die ballistische mittlere freie Weglänge senkrecht zur Oberfläche der primär angeregten Elektronen ist. Die Skintiefe  $\delta_{skin} = 13$  nm ergibt sich aus den optischen Konstanten für die entsprechende Wellenlänge von  $\lambda = 800$  nm des Lasers. Die freie Weglänge  $\lambda_{ball,\sigma} = v_{ball,\sigma} \cdot \tau_{ball,\sigma}$  wurde mit der mittleren Geschwindigkeit  $v_{ball,\sigma}$  und Lebensdauer  $\tau_{ball,\sigma}$  [55] der primär angeregten Elektronen berechnet. Die Geschwindigkeit  $v_{ball,\sigma}$  wurde mit Hilfe von Rechnungen der Bandstruktur mittels Dichtefunktionaltheorie bestimmt, siehe Kapitel 3.2.2. Die Konstante  $c_\sigma$  wird zur Anpassung der Simulation an die Experimente verwendet, siehe Tabelle 6.1.

Als **Zerfallsterm** wird eine exponentielle Abnahme der Elektronendichte mit der Zerfallskonstante  $\tau_{el} = 100$  fs angenommen, was eine typische Thermalisierungszeit von 3d-Metallen ist [17]. Der Spinstrom klingt mit der Thermalisierung des elektronischen Systems ab [9].

Zur Berücksichtigung des Kupfersubstrats wurde die Dichte angeregter Elektronen  $n_\sigma = 0$  im Substrat gesetzt. Das wird durch die sehr große mittlere freie Weglänge von  $\lambda = 70$  nm [18] der Elektronen gerechtfertigt. Somit stellt das Kupfersubstrat eine Elektronen-/ Spinsenke dar



und ein starker Gradient an der Grenzfläche entsteht. Dies führt zu einem schnellen Abtransport von Elektronen.

Die Änderung der Magnetisierung ergibt sich aus der Bilanz der magnetischen Momente von ein- und auslaufenden Elektronen,

$$\frac{\partial m(z, t)}{\partial t} = D_{\uparrow} \cdot \frac{\partial^2 n_{\uparrow}(z, t)}{\partial z^2} - D_{\downarrow} \cdot \frac{\partial^2 n_{\downarrow}(z, t)}{\partial z^2}. \quad (3.11)$$

In Abbildung 3.3 ist der räumliche Verlauf der Magnetisierung, nach diesem Modell für  $d = 20$  nm von Co/Cu(001) für  $\tau = 170$  fs nach der Anregung, dargestellt. Eine ausführliche Diskussion der Dynamik ist in Kapitel 6.3 gegeben. Alle für die Simulationen verwendeten Parameter sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

Parameter	Sym.	Co Maj.	Co Min.	Cu	Einheit	Quelle
Phonon-Kopplungs-Konstante	$g$	$93 \cdot 10^6$		$10 \cdot 10^6$	$\frac{\text{W}}{\text{m}^3 \cdot \text{K}}$	[56]
Wärmekapazität	$C_l$	24,81		24,44	$\frac{\text{J}}{\text{mol} \cdot \text{K}}$	[57]
Wärmekapazitätskoeffizient	$\gamma$	4,4		0,69	$\frac{\text{mJ}}{\text{mol} \cdot \text{K}^2}$	[58]
Debye Temperatur	$\theta$	386		310	K	[53]
Dichte	$\rho$	8,86		8,96	$\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	[59]
Molare Masse	$M$	58,93		63,55	$\frac{\text{g}}{\text{mol}}$	[60]
Thermische Leitfähigkeit	$\kappa$	100		400	$\frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$	[53]
Curie-Temperatur	$T_c$	1388		-	K	[11]
R-Parameter aus dem M3TM	$R$	25,3		-	$\frac{1}{\text{ps}}$	[11]
Abklingzeit des Spinstroms	$\tau_{\text{el}}$	100		-	fs	Simulation
Diffusionskoeffizient	$D$	2,4	0,27	-	$\frac{\text{m}^2}{\text{fs}}$	Rechnung /siehe oben
Mittlere Geschwindigkeit von 0 bis 0,5 eV	$v$	0,6	0,2	-	$\frac{\text{fs}}{\text{nm}}$	Abbildung 3.6
Mittlere Lebensdauer von 0 bis 0,5 eV	$\tau$	22	20	-	fs	[55]
Geschwindigkeit primärer Elektronen	$v_{\text{ball}}$	1	0,3@	-	$\frac{\text{fs}}{\text{nm}}$	Abbildung 3.6
Lebensdauer primärer Elektronen	$\tau_{\text{ball}}$	18	6	-	fs	Abbildung 3.6

Tabelle 3.1: **Parameter aus den Simulationen.** Verwendete Parameter der Simulationen des eM3TM und des SDM nach Formel (3.9). Für Normierungskonstanten  $c_\sigma$  und absorbierte Fluenz  $F_{\text{abs},i}$  siehe Abbildung 6.2 und Tabelle 6.1.

### 3.2.2. Dichtefunktionaltheorie

Die verwendeten Geschwindigkeiten der Elektronen in dem spinpolarisierten Diffusionsmodell (SDM) wurden aus der Bandstruktur von Kobalt und der primären Anregungswahrscheinlichkeit des Lasers bestimmt, welche mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie berechnet wurden [61]. In diesem Unterkapitel wird die Berechnung genauer erläutert. Die Rechnungen der Bandstruktur und Anregungswahrscheinlichkeit entstand in einer Kooperation mit Malte Rösner und Tim Wehling von der Universität Bremen [61].

In Abbildung 3.4 ist die berechnete Bandstruktur für Majoritäts- und Minoritätselektronen bezüglich der Fermienergie  $E_{\text{Fermi}}$  für Kobalt dargestellt. Die Farben der Energiebänder kennzeichnen den orbitalen Charakter der Bänder. In einem energetischen Bereich von  $\Delta E = 1,55 \text{ eV}$ , der von dem Laserpuls angeregt wird, besitzen die Bänder von Majoritätselektronen vorwiegend einen p-Bandcharakter (lila) und von Minoritätselektronen einen d-Bandcharakter (rot). Elektronen in p-Bändern können sich schneller bewegen als in d-Bändern, dies ist anhand der Steigungen der Bänder erkennbar, siehe Formel (3.14).

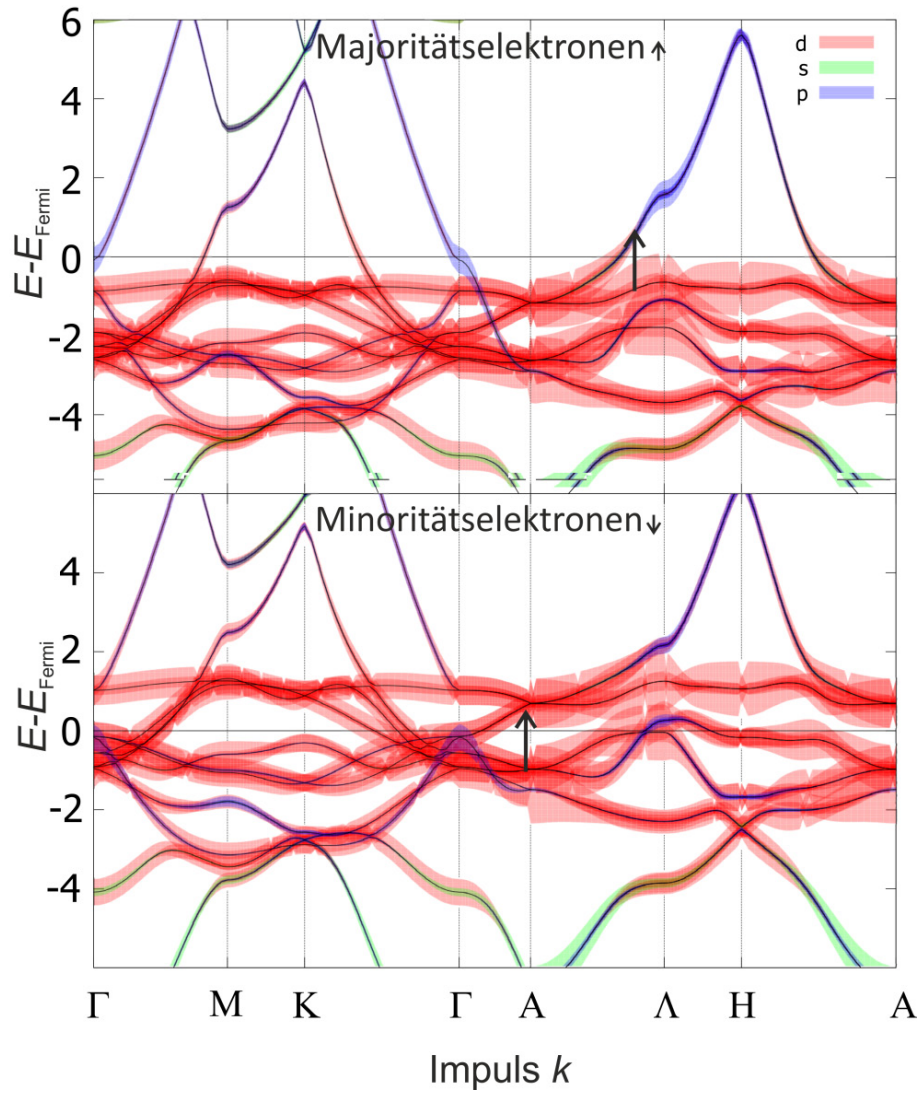


Abbildung 3.4: **Bandstruktur von Kobalt.** Energiebänder bezüglich der Fermienergie  $E_{\text{Fermi}}$  entlang verschiedener Symmetrieachsen in der Brillouinzone für Majoritäts- (oben) und Minoritätselektronen (unten). Die Farben kennzeichnen den Charakter des Energiebandes, (d-Band: rot, s-Band: grün, p-Band: lila). Die Anregungsenergie  $E_{\text{ex}} = \hbar\omega = 1,55 \text{ eV}$  des Lasers ist durch senkrechte Pfeile eingezeichnet.

Aus den berechneten Bandstrukturen von Majoritäts- und Minoritätselektronen wurden Anregungswahrscheinlichkeiten  $P$  von Elektron-Loch-Paaren in den Zuständen  $|c, k, \sigma\rangle$  (Elektron) und  $|v, k, \sigma\rangle$  (Loch) mit dem Kristallgitterimpuls  $k$  und Spin  $\sigma$  nach Fermis goldener Regel

$$P(k, \sigma, c, v) = |M_{c,v,\sigma}^k|^2 \cdot \delta(E_{c,k,\sigma} - E_{v,k,\sigma} - E_{\text{ex}}) \quad (3.12)$$

berechnet, wobei  $|M_{c,v,\sigma}^k|$  das optische Übergangsmatrixelement für p-polarisiertes Licht,  $E_{i,k,\sigma}$  die Energie des Leitungsbandes ( $i = c$ ) und Valenzbandes ( $i = v$ ) ist. Die Anregungsenergie des Lasers beträgt  $E_{\text{ex}} = \hbar\omega = 1,55$  eV. Die Anregungswahrscheinlichkeit wurde mit einer Gaußfunktion mit einer Breite von 0,01 eV verbreitert, um die spektrale Breite der Laserpulse zu berücksichtigen. Die Dichte der angeregten Elektronen folgt daraus aus

$$Dos_{\text{ex}}(E) = \frac{1}{N} \sum P(k, \sigma, c, v) \cdot \delta(E_{v/c,k,\sigma} - E), \quad (3.13)$$

wobei  $N$  die Anzahl der Zustände ist. Die Bandindexes  $v, c$  beziehen sich auf Zustände unterhalb und oberhalb der Fermienergie. In Abbildung 3.5 ist die Dichte der angeregten Majoritäts- und Minoritätselektronen dargestellt. Für Majoritätselektronen liegt die primäre Anregungsenergie bei  $E_{\uparrow} = 0,7$  eV und für Minoritätselektronen bei  $E_{\downarrow} = 1,1$  eV.

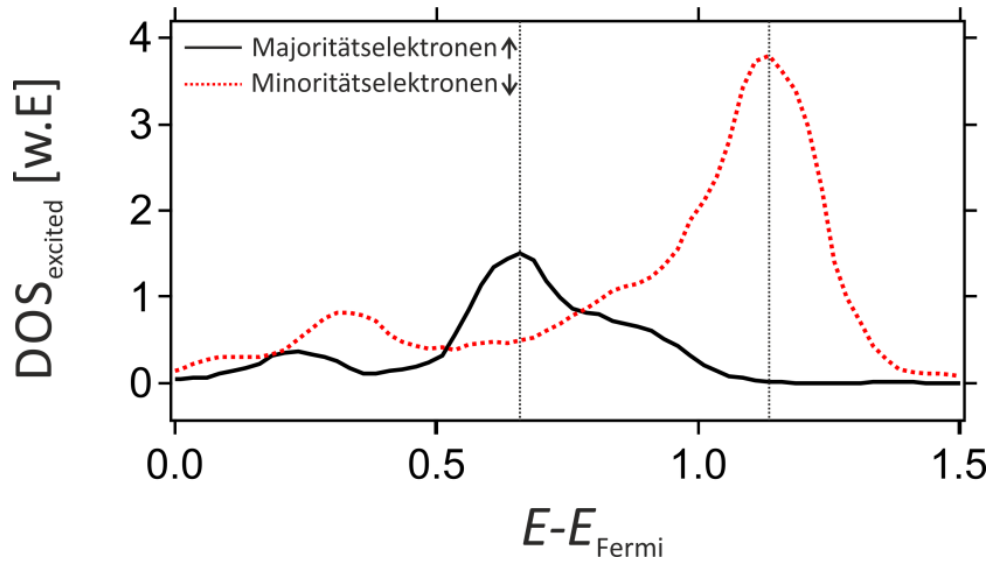


Abbildung 3.5: **Dichte angeregter Majoritäts- und Minoritätselektronen.** Berechnete Dichte primär angeregter Ladungsträger in Kobalt bezüglich der Fermienergie  $E_{\text{Fermi}}$  mit einer Anregungsenergie von  $E_{\text{ex}} = \hbar\omega = 1,55 \text{ eV}$ . Für Majoritätselektronen (schwarz, durchgezogene Kurve) liegt die primäre Anregungsenergie (senkrechte Linien) bei  $E_{\uparrow} = 0,7 \text{ eV}$  und für Minoritätselektronen (rot, gestrichelte Kurve) bei  $E_{\downarrow} = 1,1 \text{ eV}$ .

In den Simulationen des SDM wird die senkrechte Komponente der Gruppengeschwindigkeit  $v_{\sigma}$  der Elektronen verwendet, welche mit der Formel

$$v_{\sigma} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial}{\partial k} E_{\sigma} \quad (3.14)$$

berechnet wurde. In Abbildung 3.6 ist die Energieabhängigkeit der Geschwindigkeit von Majoritäts- und Minoritätselektronen dargestellt. Die verschiedenen Verläufe der Geschwindigkeit entstehen durch die unterschiedlichen Bänder in der Bandstruktur. Für die Simulationen wird im Diffusionsterm die mittlere Geschwindigkeit  $v_{\sigma}$  der Elektronen in

einem Bereich von  $\Delta E = 0,5$  eV oberhalb der Fermienergie und im Quellterm die mittlere Geschwindigkeit  $v_{\text{ball},\sigma}$  der primär angeregten Elektronen verwendet. Die primären Anregungsenergien sind in Abbildung 3.6 eingezeichnet. Die Werte der Geschwindigkeiten sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

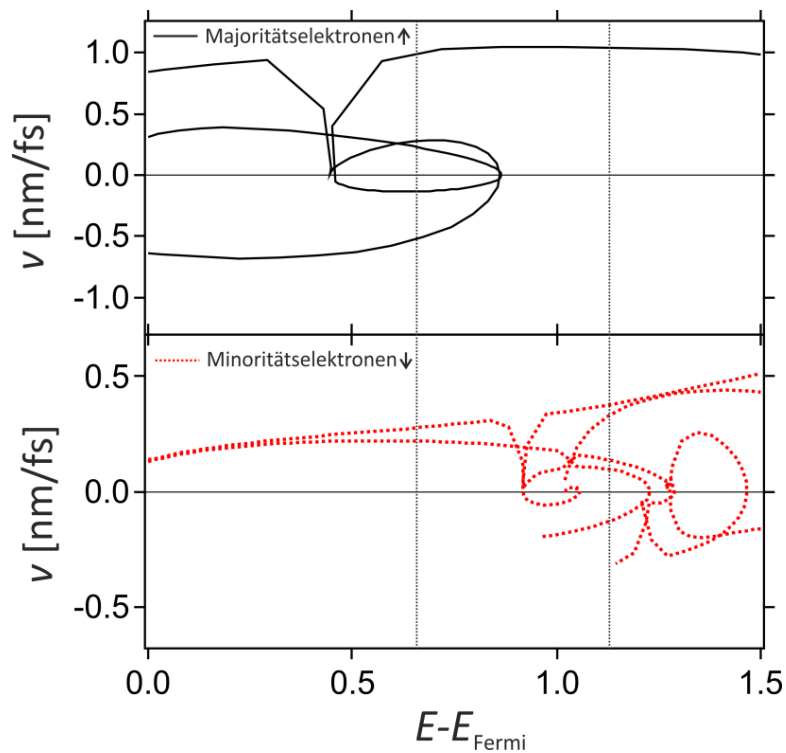


Abbildung 3.6: **Gruppengeschwindigkeit von Elektronen in Kobalt.** Geschwindigkeitskomponente bezüglich der Fermienergie  $E_{\text{Fermi}}$  senkrecht zur Oberfläche von mehreren Energiebändern für Majoritäts- (schwarz, durchgezogene Kurve) und Minoritätselektronen (rot, gestrichelte Kurve) in Kobalt. Senkrechte Linien sind die primären Anregungsenergien für Majoritäts- ( $E_{\uparrow} = 0,7$  eV) und für Minoritätselektronen ( $E_{\downarrow} = 1,1$  eV).





## 4. Magnetooptik

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Magnetooptik, speziell mit dem magnetooptischen Kerreffekt, der in dieser Arbeit verwendet wird, um die Magnetisierungsdynamik von Co/Cu(001) zu detektieren. Der magnetooptische Kerreffekt (MOKE) beschreibt die Reflexion von elektromagnetischer Strahlung (Licht) von einer magnetischen Oberfläche. Im ersten Teil werden die unterschiedlichen Geometrien des Kerreffektes und die Auswirkungen auf das reflektierte Licht vorgestellt. Anschließend wird die Tiefensensitivität des Effektes allgemein diskutiert und danach die Sensitivitäten für Co/Cu(001) in Abhängigkeit der Kobaltschichtdicke berechnet.

Nach der Betrachtung des Kerreffekts wird die Erzeugung der zweiten Harmonischen, das heißt Licht mit der doppelten Frequenz, an Grenzflächen diskutiert. Für Cu/Co(001) ist die Erzeugung grenzflächensensitiv und hängt von der Magnetisierung ab. Dies erlaubt eine Untersuchung von der Grenzflächendynamik.

### 4.1. Magnetooptischer Kerreffekt (MOKE)

Beim Kerreffekt wird gewöhnlich zwischen drei verschiedenen Anordnungen der Magnetisierung  $\vec{M}$  in Bezug auf die Einfallsebene der Strahlung und der Probenoberfläche unterschieden. Beim polaren Kerreffekt liegt  $\vec{M}$  senkrecht, beim transversalen und longitudinalen liegt  $\vec{M}$  parallel zur Oberfläche. Beim longitudinalen Kerreffekt ist  $\vec{M}$  zusätzlich parallel und beim transversalen senkrecht zur Einfallsebene, siehe Abbildung 4.1.

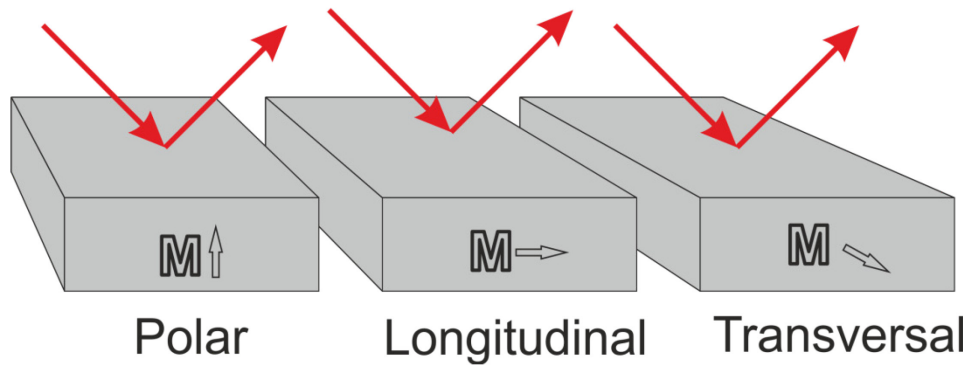


Abbildung 4.1: **Geometrien des magnetooptischen Kerreffekts.** Die Geometrien unterscheiden sich in Bezug auf die Magnetisierung. Der polare und longitudinale Kerr-Effekt verursachen für p-polarisiertes Licht eine Änderung des Polarisationszustandes von linear zu elliptisch bei der Reflexion. Der transversale Kerreffekt modifiziert den Reflexionsgrad.

Der Einfluss der Magnetisierung hängt von dem Polarisationszustand und dem Einfallswinkel der einfallenden Strahlung sowie von der verwendeten Geometrie ab. Die Reflektivität und Polarisation kann durch die Magnetisierung geändert werden. Eine einfache Beschreibung der Reflexion ist durch den Jones-Formalismus [62-64] gegeben, wobei die Reflexion durch eine lineare Abbildung dargestellt wird. Dazu wird das Licht zuerst in die s- und p-polarisierte Komponente zerlegt und der Jones Vektor  $\vec{E}$  definiert

$$\vec{E} = \begin{bmatrix} E_s \\ E_p \end{bmatrix}, \quad (4.1)$$

wobei  $E_s$  und  $E_p$  die Amplituden der s- und p-polarisierten Strahlung sind. Die Reflexion an einer Oberfläche kann anschließend mit der Reflexionsmatrix  $\hat{r}$  beschrieben werden

$$\vec{E}^r = \hat{r} \cdot \vec{E}^i, \quad (4.2)$$

$$\begin{bmatrix} E_s^r \\ E_p^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_s^i \\ E_p^i \end{bmatrix},$$

wobei  $r_{kj}$  die Reflexionskoeffizienten für die unterschiedlichen Reflektivitäten von Polarisationszustand j nach k sind. Die Indizes (i,r) stehen für das einfallende und reflektierte Feld. In Tabelle 4.1 sind die Reflexionsmatrizen für die unterschiedlichen Geometrien des Kerreffekts und die Abhängigkeit von der Magnetisierung aufgelistet, mit deren Hilfe der Einfluss der Magnetisierung auf das reflektierte Licht und die Observablen des Kerreffektes berechnet werden kann. Die Observablen des Kerreffektes setzen sich aus den Verhältnissen der Reflexionskoeffizienten zusammen, siehe Formel (4.3) und (4.6).

Geometrie	Senkrechter Einfall	Schräger Einfall	Magnetisierungs- Abhängigkeit
<b>Polar</b>	$\begin{bmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & -r_{ss} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} r_{ss} & r_{ps} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{bmatrix}$	$r_{ss}, r_{pp}$ : unab. von $m$ $r_{sp} = r_{ps}$ : ungerade mit $m$
<b>Longitudinal</b>	$\begin{bmatrix} r_{ss} & 0 \\ 0 & -r_{ss} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} r_{ss} & -r_{ps} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{bmatrix}$	$r_{ss}, r_{pp}$ : unab. von $m$ $r_{sp} = -r_{ps}$ : ungerade mit $m$
<b>Transversal</b>	$\begin{bmatrix} r_{ss} & 0 \\ 0 & -r_{ss} \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} r_{ss} & 0 \\ 0 & r_{pp}^{(0)} + r_{pp}^{(mag)} \end{bmatrix}$	$r_{ss}, r_{pp}^{(0)}$ : unab. von $m$ $r_{pp}^{(mag)}$ : ungerade mit $m$

Tabelle 4.1: **Reflexionsmatrizen für den polaren, longitudinalen und transversalen Kerr-Effekt [64]**. Die erste Spalte gibt die Matrizen für einen senkrechten und die zweite für einen schrägen Einfall an. In der dritten Spalte sind Magnetisierungsabhängigkeiten der Reflexionskoeffizienten  $r_{ij}$  aufgelistet, die Koeffizienten geben den Reflexionsgrad vom Polarisationszustand j nach i an.

In dieser Arbeit wurden der transversale und der longitudinale Kerreffekt mit p-polarisierter einfallender Strahlung und einem Einfallswinkel von  $\varphi = 45^\circ$  verwendet. Die nachfolgende Beschreibung beschränkt sich auf diese Konfiguration.

### 4.2. Longitudinaler MOKE

Beim longitudinalen MOKE ändert sich der Polarisationszustand des Lichtes bei der Reflexion an einer magnetischen Grenzfläche von linear zu elliptisch. Bei elliptisch polarisiertem Licht durchläuft die Spitze des elektrischen Feldvektors  $\vec{E}$  eine Ellipse, die durch ihre Elliptizität  $\varepsilon$  und Drehung  $\theta$  um die ursprüngliche Polarisationsrichtung (x-Achse) beschrieben werden kann, siehe Abbildung 4.2. Die Winkel  $\theta$  und  $\varepsilon$  sind positiv bei einer Drehung der Ellipse und Drehungen von  $\vec{E}$  im Uhrzeigersinn.

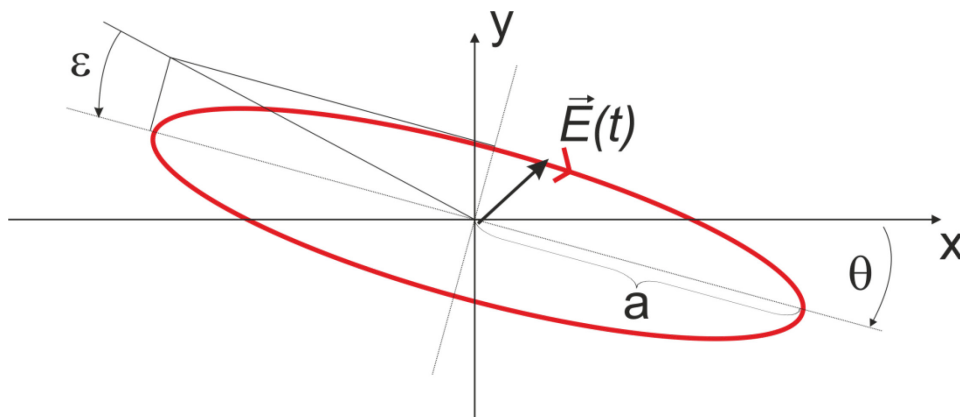


Abbildung 4.2: **Darstellung von elliptisch polarisierter Strahlung.** Die Spitze des elektrischen Feldvektors durchläuft eine Ellipse. Die Ellipse ist bestimmt durch die Länge ihrer Halbachse  $a$ , die Drehung  $\theta$  um die x-Achse und ihre Elliptizität  $\varepsilon$ . Der Winkel  $\theta$  ist positiv bei einer Drehung der Ellipse im Uhrzeigersinn. Drehungen von  $\vec{E}$  im Uhrzeigersinn bedeuten ein positives  $\varepsilon$ .

Bei sehr kleinen Winkeln  $\theta$  und  $\varepsilon$ , wie es in der dieser Arbeit der Fall ist, kann zur Darstellung der komplexe Kerrwinkel  $\Phi$  verwendet werden. Es gilt

$$\Phi = \theta + i \cdot \varepsilon = \frac{E_s}{E_p} = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \approx \frac{i \cdot n \cdot Q}{n^2} \cdot \left( \frac{\cos(\varphi_i) \cdot \tan(\varphi_t)}{\cos(\varphi_i - \varphi_t)} \right), \quad (4.3)$$

wobei  $n$  der komplexe Brechungsindex,  $Q$  der Voigt-Parameter,  $\varphi_i$  der Einfallswinkel und  $\varphi_t$  der transmittierte Winkel zur Flächennormalen der Strahlung ist. Der Voigt Parameter  $Q = q \cdot m$  ist eine Materialkonstante, die proportional zur normierten Magnetisierung  $m = M/M_0$  ist.  $M_0$  ist die Magnetisierung bei der Temperatur  $T = 0$  K und  $q$  wird die magnetooptische Konstante genannt.  $Q$  und  $q$  sind komplexe Größen. Der Winkel  $\varphi_t$  kann mit dem Snelliusschen Brechungsgesetz

$$n_i \cdot \sin(\varphi_i) = n_t \cdot \sin(\varphi_t) \quad (4.4)$$

berechnet werden, wobei  $n_i, n_t$  die Brechungsindizes der jeweiligen Medien sind. Aus Formel (4.3) folgt, dass die beiden Winkel  $\theta$  und  $\varepsilon$  proportional zur Magnetisierung sind. Die Rotation  $\theta = \Re(\Phi)$  ist der Realteil  $\Re$  und die Elliptizität  $\varepsilon = \Im(\Phi)$  ist der Imaginäreteil  $\Im$  aus den Quotienten von magnetischen und nichtmagnetischen Reflexionskoeffizienten  $r_{sp}/r_{pp}$ .

### 4.3. Transversaler MOKE

Anders als beim longitudinalen MOKE ändert sich die Polarisation für p-polarisiertes Licht beim transversalen MOKE nicht, jedoch entsteht ein zusätzlicher Beitrag in der Reflexion, der proportional zur Magnetisierung ist, siehe Tabelle 4.1. Es gilt

$$R^{\uparrow\downarrow} = \left| r_{\text{pp}}^{(0)} \right|^2 + \left| r_{\text{pp}}^{(\text{mag})} \right|^2 \pm 2 \cdot \left| r_{\text{pp}}^{(0)} \right| \cdot \left| r_{\text{pp}}^{(\text{mag})} \right| \cdot \cos(\Delta\alpha), \quad (4.5)$$

wobei  $\Delta\alpha$  die Phasendifferenz zwischen  $r_{\text{pp}}^{(0)}$  und  $r_{\text{pp}}^{(\text{mag})}$  ist. Durch Umschalten der Magnetisierung entsteht ein Kontrast in der Reflexion und zur Quantifizierung wird der magnetische Kontrast

$$\delta_k = 0,5 \cdot \frac{R^{\uparrow} - R^{\downarrow}}{R^{\uparrow} + R^{\downarrow}} = \frac{|r^{(\text{mag})}|}{|r^{(0)}|} \cdot \cos(\Delta\varphi) = \Re \left( \frac{r^{(\text{mag})}}{r^{(0)}} \right) \quad (4.6)$$

verwendet. Der magnetische Kontrast  $\delta_k$  ist der Realteil  $\Re$  aus den Quotienten von magnetischen und nichtmagnetischen Reflexionskoeffizienten.

## 4.4. Tiefensensitivitäten

Die Messgrößen Kerrrotation  $\theta$ , Kerrelliptizität  $\varepsilon$  und der magnetische Kontrast  $\delta_k$  weisen unterschiedliche Tiefensensitivitäten auf [12], d.h. Magnetisierungen von unterschiedlichen Bereichen innerhalb der Probe tragen unterschiedlich stark zu den Messgrößen bei, siehe Abbildung 4.5. Die Tiefenabhängigkeit wurde 1992 von Träger et al. [12] vorgestellt, wobei für die Berechnung keine Herleitung angegeben wurde. In diesem Unterkapitel wird eine Herleitung der Sensitivitäten im magnetischen Schichtsystem vorgestellt und erläutert, welche Prozesse hierbei entscheidend sind. Darauf folgt die Berechnung und Diskussion für das Schichtsystem Co/Cu(001), welches in dieser Arbeit untersucht wurde. Durch die Tiefensensitivitäten und relativen Änderungen zwischen den Observablen des Kerreffektes können Rückschlüsse über das Magnetisierungsprofil erhalten werden. Abhängig von den mikroskopischen Wechselwirkungen können durch die Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls fundamental unterschiedliche Magnetisierungsprofile entstehen, die mit einer Profilanalyse identifizierbar sind, siehe Kapitel 3. Dies bietet die Möglichkeit, die dominierenden Wechselwirkungen nach der Laseranregung zeitlich zu separieren.

Zur Berechnung der Tiefensensitivitäten wird die Reflexion an einem magnetischen Schichtsystem, in **erster Ordnung** mit der Magnetisierung  $M$ , berechnet. Innerhalb der Schichten sind Magnetisierungsgradienten  $dM/dz$  erlaubt. Die Profile werden diskretisiert, und die ursprünglichen magnetischen Schichten in Unterschichten eingeteilt. Die Unterschichten haben die gleichen optischen Parameter, aber unterschiedliche Magnetisierungen  $M_i$ , siehe Abbildung 4.3. Die Magnetisierungen  $M_i$  der Unterschichten werden auf die ungestörte Magnetisierung  $M_0$  normiert  $m_i = M_i/M_0$ .

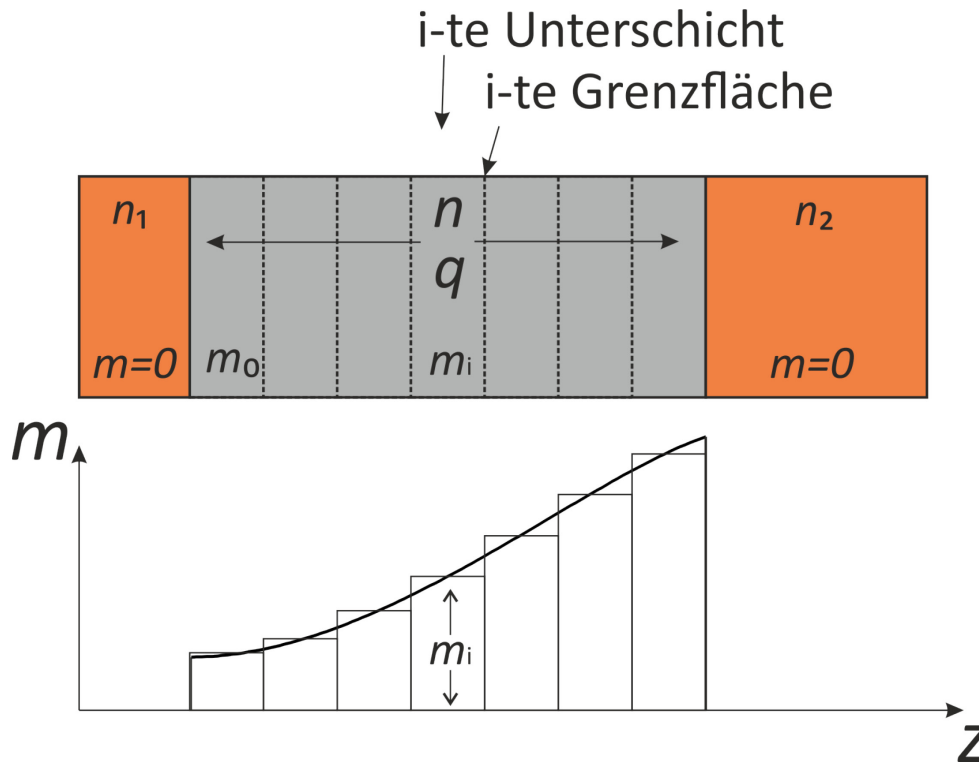


Abbildung 4.3: **Magnetisches Schichtsystem.** Magnetisierungsprofile werden diskretisiert und die magnetische Schicht in Unterschichten mit konstanten Brechungsindizes  $n$  und magnetooptischen Konstanten  $q$  eingeteilt.

In erster Ordnung breitet sich der nichtmagnetische Beitrag des Lichtes  $E_0(z)$  im Schichtsystem aus, als ob keine Magnetisierung vorhanden wäre,  $m_i|_{V_i} = 0$ , wobei sich das Feld aus einer nach links  $E_{0,l}(z)$  und nach rechts  $E_{0,r}(z)$  laufenden Welle zusammensetzt,  $E_{\text{non}}(z) = E_{\text{non},l}(z) + E_{\text{non},r}(z)$ . Die Form des Feldes  $E_{\text{non}}(z)$  hängt dabei von der Ausbreitung in der Materie, Reflektion und Transmission an Grenzflächen ab. Für dünnere Schichten können auch Mehrfachreflektionen merklichen Einfluss nehmen [52, 63, 65].

Die Magnetisierung kann durch drei Effekte mit dem Licht wechselwirken, Reflexion und Transmission an einer Grenzfläche und durch den Faraday-Effekt innerhalb einer Schicht [65]. In erster Ordnung können die Effekte addiert werden und wechselwirken nicht untereinander, dieses würde ansonsten einen Effekt höherer Ordnung in  $M$  bedeuten. Zur Berechnung der Tiefensensitivität wird zuerst der magnetische Beitrag der Reflektion an der



i-ten Grenzfläche an der Position  $z_i$  betrachtet und die Reflektion in erster Ordnung nach der Magnetisierung entwickelt:

$$\hat{r}_i(m_i, m_{i+1}) = \underbrace{\hat{r}_i|_{0,0}}_{\hat{r}_{i,non}} + \underbrace{\frac{\partial \hat{r}_i}{\partial m_i}}_{\hat{r}_{i,mag}} \bigg|_{0,0} \cdot m_i + \underbrace{\frac{\partial \hat{r}_i}{\partial m_{i+1}}}_{\hat{r}_{i,mag+1}} \bigg|_{0,0} \cdot m_{i+1}, \quad (4.7)$$

wobei  $\hat{r}_{i,non}$  die Reflektion ohne Magnetisierung,  $\hat{r}_{i,mag}$  der magnetische Anteil wenn  $(m_i = 1, m_{i+1} = 0)$  und  $\hat{r}_{i,mag+1}$  wenn  $(m_i = 0, m_{i+1} = 1)$  ist. Das Licht  $E_{non}(z_i)$  wird an dieser Grenzfläche reflektiert und breitet sich anschließend im Schichtsystem weiter zur Oberfläche  $z = 0$  aus, wo es zur gesamten Reflexion des Lichtes am Schichtsystem beitragen kann. Nach der Reflektion mit der Grenzfläche wechselwirkt das Licht in erster Ordnung nicht mehr mit der Magnetisierung. Entscheidend bei dieser Betrachtung ist, dass zwei Beiträge im magnetischen Signal  $E_{mag}^{r_i} = E_{mag,i}^{r_i} \cdot m_i + E_{mag,i+1}^{r_i} \cdot m_{i+1}$  entstehen, einer  $E_{mag,i}^{r_i}$  als ob nur die i-te  $(m_i = 1, m_{i+1} = 0)$  und einer  $E_{mag,i+1}^{r_i}$  als ob nur die (i+1)-te Schicht magnetisch wäre. Für Systeme mit mehreren Schichten kann die nach links  $E_{0,l}$  und nach rechts  $E_{0,r}$  laufende Welle durch Mehrfachreflektionen zum magnetischen Signal beitragen.

Für die Transmission an einer Grenzfläche und den Faraday-Effekt innerhalb einer Schicht kann dieselbe Herleitung gemacht werden und die einzelnen Beiträge können nach dem Superpositionsprinzip addiert werden. Durch Umordnen aller Beiträge kann das reflektierte Feld  $E^r$  vom Schichtsystem als Summe geschrieben werden

$$E^r = E_0^r + \sum_i E_{mag,i} \cdot m_i, \quad (4.8)$$

wobei  $E_{mag,i}$  der magnetische Beitrag ist, wenn nur die i-te Schicht magnetisch wäre.

Die Observablen des Kerreffektes, der komplexe Kerrwinkel  $\Phi$  und der magnetische Kontrast  $\delta_k$  sind der Quotient aus magnetischer und nichtmagnetischer Reflektion, siehe Formel (4.3) und (4.6), wodurch diese ebenfalls als Summe

$$\Phi = \sum_{i=0}^N \Phi_i \cdot m_i \quad (4.9)$$

und

$$\delta_k = \sum_{i=0}^N \delta_{k,i} \cdot m_i \quad (4.10)$$

geschrieben werden können, **wobei  $\Phi_i$  der Kerrwinkel und  $\delta_{k,i}$  der magnetische Kontrast ist, wenn nur die i-te Schicht magnetisch ist.** Zur Berechnung von  $\Phi_i$  und  $\delta_{k,i}$  wird in dieser Arbeit der Matrixformalismus von Zak et al. [65] verwendet.

Durch den Übergang zu unendlich dünnen Unterschichten kann der Kerrwinkel  $\Phi$  und der magnetische Kontrast  $\delta_{k,i}$  als Integration über einen Bereich  $\Omega$ , der alle magnetischen Schichten einschließt, geschrieben werden:

$$\begin{aligned} \Phi &= \theta + i \cdot \varepsilon = \int_{\Omega} \hat{\zeta}(z) \cdot m(z) dz \\ &= \int_{\Omega} \zeta_{\theta}(z) \cdot m(z) dz + i \int_{\Omega} \zeta_{\varepsilon}(z) \cdot m(z) dz \end{aligned} \quad (4.11)$$

und

$$\delta_k = \int_{\Omega} \zeta_{\delta_k}(z) \cdot m(z) dz \quad (4.12)$$

wobei  $\zeta = \zeta_{\theta} + i \cdot \zeta_{\epsilon}$  eine komplexe Funktion und  $\zeta_{\delta_k}$  eine reelle Funktion ist, die beschreiben, in welchem Maß die Magnetisierung in der Tiefe  $z$  zu  $\Phi$  bzw.  $\delta_k$  beiträgt. Zur speziellen Berücksichtigung von laserinduzierten dynamischen Prozessen ist es zweckmäßig, die Funktion  $\zeta$  zu normieren, wobei der reale und imaginäre Teil separat auf die Gleichgewichtswerte der Rotation  $\theta_0$  und Ellipticity  $\epsilon_0$  normiert werden,

$$\zeta = \frac{\zeta_{\theta}}{\theta_0} + i \cdot \frac{\zeta_{\epsilon}}{\epsilon_0}. \quad (4.13)$$

Die Funktion  $\zeta_{\delta_k}$  wird auf den Gleichgewichtswert des magnetischen Kontrastes  $\delta_{k,0}$  normiert

$$\zeta_{\delta_k} = \zeta_{\delta_k} / \delta_{k,0}. \quad (4.14)$$

Dadurch ist ein einfacher Ausdruck für laserinduzierte Änderungen der Magnetisierung  $\Delta m = (M(t) - M_0)/M_0$  möglich,

$$\frac{\theta(t) - \theta_0}{\theta_0} + i \cdot \frac{\epsilon(t) - \epsilon_0}{\epsilon_0} = \frac{\Delta\theta}{\theta_0} + i \cdot \frac{\Delta\epsilon}{\epsilon_0} = \int_{\Omega} \zeta(z) \cdot \Delta m dz \quad (4.15)$$

und

$$\frac{\delta_k(t) - \delta_{k,0}}{\delta_{k,0}} = \frac{\Delta\delta_k}{\delta_{k,0}} = \int_{\Omega} \zeta_{\delta_k}(z) \cdot \Delta m \, dz \quad (4.16)$$

wobei  $\theta(t)$ ,  $\varepsilon(t)$  und  $\delta_k(t)$  die zeitliche Variationen der Rotation, der Elliptizität bzw. des magnetischen Kontrastes sind. Im Folgenden werden die Funktionen  $\hat{\zeta}$  und die normierte Funktion  $\zeta$  beide mit MOKE-Sensitivität bezeichnet. Der Realteil von  $\hat{\zeta}, \zeta$  ist eine Gewichtung für die Kerrrotation und der Imaginärteil für die Kerrelliptizität, wobei beide Teile eine unterschiedliche Tiefenabhängigkeit aufweisen. Die genaue Abhängigkeit wird von der Zusammensetzung der Schichten im System bestimmt, wobei die optischen Parameter, sowie die Dicken der einzelnen Schichten Einfluss haben.

### 4.5. Volumenmaterial

Um ein besseres Verständnis der Mechanismen zu bekommen, die zu unterschiedlichen Sensitivitäten führen, wird die Tiefensensitivität für ein magnetisches Volumenmaterial berechnet, wofür ein analytischer Ausdruck möglich ist. Für Volumenmaterial können in erster Ordnung nur Beiträge durch Reflektion auftreten. Beiträge von Transmission an einer Grenzfläche und durch den Faradayeffekt würden eine Reflektion an einer Grenzfläche mit unterschiedlichen Brechungsindizes erfordern.

Zur Berechnung wird zuerst der magnetische Anteil des reflektierten Lichtes  $E_{\text{mag}}$  berechnet, dieser setzt sich als Summe aus der Reflektion an der Oberfläche zum Vakuum  $E_0^r$  und den inneren Grenzflächen  $E_i^r$  zusammen,

$$\vec{E}_{\text{mag}} = \vec{E}_0^r + \sum_i \vec{E}_i^r. \quad (4.17)$$

Das von der Magnetisierung „ungestörte“ elektrische Feld an der  $i$ -ten Grenzfläche an der Position  $z_i$  beträgt  $\vec{E}_{\text{non}}(z_i) = \vec{E}_0 \cdot \hat{t}_{\text{vac}/\text{Ferro}} \cdot \exp(\beta)$ , wobei  $\vec{E}_0$  die elektrische Feldstärke des eingestrahlten Lichtes und  $\hat{t}_{\text{vac}/\text{Ferro}}$  die Transmissionsmatrix der Oberfläche zum ferromagnetischen Material ist. Der exponentielle Faktor beschreibt die Propagation des Lichtes durch die Materie, mit  $\beta = i \cdot 2\pi/\lambda \cdot n \cdot \alpha_z \cdot z_i$ , wobei  $\lambda$  die Wellenlänge,  $n$  der Brechungsindex und  $\alpha_z = \cos(\varphi)$  mit den Winkel  $\varphi$  in der Materie ist [65].

Die Reflektion an einer Grenzfläche, an der die optischen Parameter konstant sind und die Magnetisierung von  $m_i$  auf  $m_{i+1}$  springt, ist proportional zur Differenz  $\Delta m_i = m_{i+1} - m_i$ , siehe Tabelle 4.2, wodurch ein Faktor  $\hat{r}_{\text{mag}} \cdot \Delta m_i$  durch die Reflektion entsteht. Die Werte in Tabelle 4.2 wurden in erster Ordnung mit dem Matrixformalismus von Zak et al. [65] berechnet. Nach der Reflektion propagiert das Licht zurück zur Oberfläche und transmittiert durch die Oberfläche. Es entsteht ein Faktor  $\exp(\beta)$  durch die Propagation und ein Faktor  $\hat{t}_{\text{co}/\text{Vac}}$  durch die Transmission, wobei  $\hat{t}_{\text{co}/\text{Vac}}$  die Transmissionsmatrix der Grenzfläche vom Ferromagneten zum Vakuum ist. Daraus folgt:

$$E_i^r = \vec{c} \cdot \vec{E}_0 \cdot \exp(2\beta) \cdot \Delta m_i, \quad (4.18)$$

wobei  $\vec{c} = \hat{r}_{\text{mag}} \cdot \hat{t}_{\text{Ferro}/\text{Vac}} \cdot \hat{t}_{\text{vac}/\text{Ferro}}$  ist. Durch Einsetzen von Formel (4.18) in Formel (4.28) und dem Übergang zu unendlich dünnen Schichten folgt:

$$\vec{E}_{\text{mag}} = \vec{E}_0^r + \vec{c} \int_0^\infty \frac{dm(z)}{dz} \cdot \exp(2\beta) dz. \quad (4.19)$$

Das Integral kann mit Hilfe der Produktregel zu

$$\vec{E}_{\text{mag}} = \vec{E}_0^r + \vec{d} + \frac{\vec{c}}{2\beta} \int_0^\infty m(z) \cdot \exp(2\beta z) dz \quad (4.20)$$

umgeschrieben werden, mit  $\vec{d} = \vec{c} \cdot \exp(2\beta) \cdot m|_0^\infty = \vec{c} \cdot m_0$ . Durch Bilden des Quotienten  $E_{\text{mag},(s/p)}/E_{\text{non},(s/p)}$  folgt für den komplexen Kerrwinkel  $\Phi$  und den magnetischen Kontrast  $\delta_k$ :

$$(\Phi, \delta_k) = \frac{E_{\text{mag},(p/s)}}{E_{\text{non},(p,s)}} = \frac{E_{0,(p,s)}^r + d_{(p,s)}}{d_{(p/s)}} + \frac{c_{(s,p)}}{2\beta} \int_0^\infty m(z) \cdot \exp(2\beta z) dz, \quad (4.21)$$

wobei (p/s) für die entsprechende s- bzw. p-Komponente der Variable steht. Für den komplexen Kerrwinkel  $\Phi$  ist der magnetische Anteil s-polarisiert und der nichtmagnetische p-polarisiert, siehe Formel (4.3). Für den magnetischen Kontrast sind beide Komponenten p-polarisiert, siehe Formel (4.6).

Transversal	Longitudinal
$\begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & -\frac{i}{2}q \cdot \tan(\varphi) \end{bmatrix}$	$\begin{bmatrix} 0 & -\frac{i}{4}q \cdot \tan(\varphi) \\ \frac{i}{4}q \cdot \tan(\varphi) & 0 \end{bmatrix}$

Tabelle 4.2: **Reflexionsmatrizen**  $\hat{r}_{\text{mag}}$ . Matrizen beziehen sich auf eine Grenzfläche, an der sich die optischen Parameter nicht ändern und nur die Magnetisierung springt. Die Matrizen wurden, in erster Ordnung mit der Magnetisierung, mit dem Matrixformalismus berechnet [65], wobei  $\varphi$  der Winkel innerhalb der Schicht und  $q$  die magneto-optische Konstante ist.

Nach Formel (4.13) und (4.16) kann  $\Phi$  und  $\delta_k$  als Integral über die Magnetisierung geschrieben werden und der erste Term vor dem Integral muss Null sein. Für eine homogene Magnetisierung mit  $m = 1$  muss der zweite Term den Gleichgewichtswert des komplexen Kerrwinkels  $\Phi_0$  bzw. des magnetischen Kontrastes  $\delta_{k,0}$  ergeben, womit  $c = \Phi_0$  bzw.  $c = \delta_{k,0}$  ist. Die Tiefensensitivität erhält dadurch die Form:

$$\zeta = c \cdot \frac{\exp(2\beta)}{2\beta}. \quad (4.22)$$

Träger et. al. [12] fanden, bis auf den Faktor  $\alpha_z$ , den selben Ausdruck für  $\zeta$  durch Vergleichen mit den simulierten Resultaten. Formel (4.22) ist die Gleichung eines einfachen gedämpften harmonischen Oszillators.

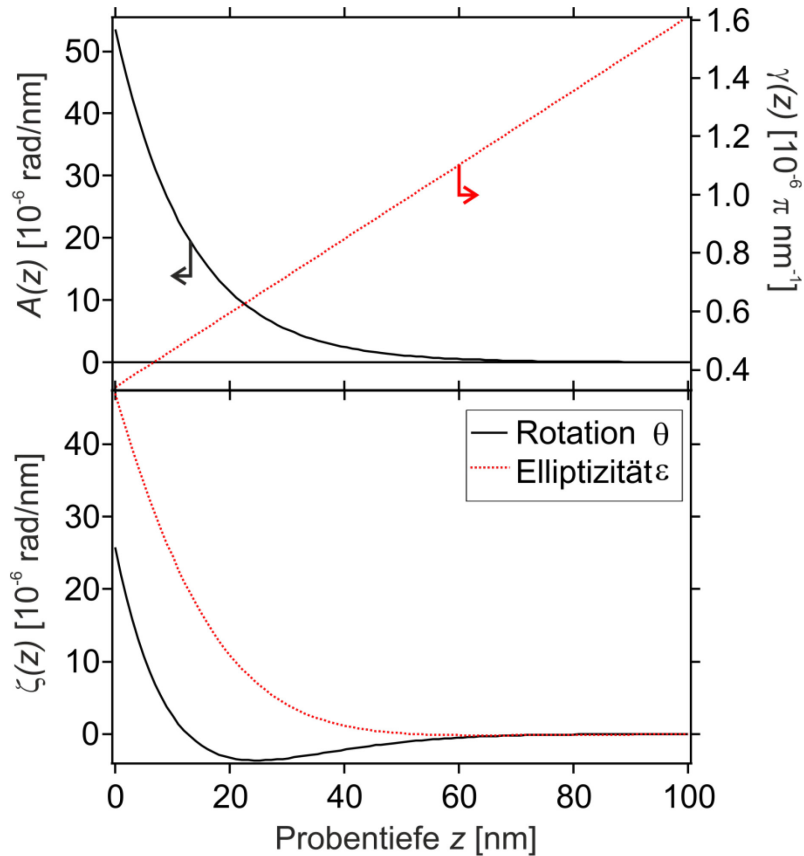


Abbildung 4.4: **MOKE-Sensitivität für Volumenkobalt.** (oben) Sensitivität dargestellt in Polarkoordinaten, die Amplitude (schwarze durchgezogene Kurve) fällt exponentiell und die Phase (rote gestrichelte Kurve) wächst linear mit der Schichtdicke. (unten) Sensitivität dargestellt in kartesischen Koordinaten. Die Projektion der Sensitivität auf die reelle Achse ergibt die Sensitivität der Rotation  $\theta$  (schwarze durchgezogene Kurve) und auf die imaginäre Achse die der Elliptizität  $\varepsilon$ , wodurch die unterschiedlichen Tiefenabhängigkeiten entstehen.

Anhand von Formel (4.22) können die Mechanismen der Tiefensensitivität anschaulich erklärt werden. Dazu wird  $\zeta$  in Polarkoordinaten dargestellt:

$$\zeta = A(z) \cdot \exp(i \cdot \gamma \cdot z), \quad (4.23)$$



wobei  $A(z)$  die Amplitude und  $\gamma$  die Phase von  $\zeta$  ist. Die Amplitude  $A(z)$  fällt aufgrund der Dämpfung exponentiell und die Phase verschiebt sich linear aufgrund der Propagation des Lichtes mit der Proben­tiefe. Hierdurch entstehen die unterschiedlichen Tiefensensitivitäten der Kerrrotation  $\theta$  und der Kerrelliptizität  $\varepsilon$ . Beide Observablen sind die Projektionen des komplexen Kerrwinkels auf die Reale- bzw. Imaginärenachse. In Abbildung 4.4 ist  $\zeta$  für Kobalt in polaren und in kartesischen Koordinaten dargestellt, woran dieses Verhalten erkennbar ist. Zur Berechnung wurde der Literaturwert des Brechungsindex  $n = 2,56 + i \cdot 4,92$  von Kobalt und der experimentelle Wert für die Voigt­konstante  $Q = 0,017 - i \cdot 0,020$  verwendet, siehe Kapitel 6.1. Der Einfallswinkel des Lichtes beträgt  $\varphi_E = 45^\circ$ .

Für Schichtsysteme müssen noch magnetische Beiträge durch Transmission und dem Faradayeffekt zum Kerreffekt mit berücksichtigt werden, jedoch bleiben die Mechanismen die gleichen, die zu unterschiedlichen Tiefensensitivitäten führen.

## 4.6. Tiefensensitivitäten für Co/Cu(001)

Im Rahmen dieser Arbeit wird die laserinduzierte Magnetisierungsdynamik vom Schichtsystem Co/Cu(001) in Abhängigkeit der Kobaltschichtdicke  $d$  untersucht, siehe Kapitel 6. Dazu werden in diesem Kapitel die MOKE-Sensitivitäten mit der Formel (4.9) und (4.10) für die untersuchten Schicht­dicken berechnet. Zur Berechnung wurde der Matrixformalismus [65] verwendet, wobei die Kobaltschichten in Unterschichten mit einer Schichtbreite von  $d_i = 0,2$  nm diskretisiert wurden. Als Substrat wird ein Kupfereinkristall verwendet, auf dem die Kobaltschichten epitaxial wachsen, siehe Kapitel 5.2, jedoch liegen keine Werte für die optischen Parameter für kristallines Kobalt und Kupfer vor. Für die Brechungsindizes werden daher die Werte für polykristalline Proben genommen,  $n_{cu} = 0,26 + i \cdot 5,26$  und  $n_{co} = 2,56 + i \cdot 4,92$  [66]. Die Voigt-Konstante  $Q$  wurde aus statischen, experimentellen Messungen für die transversale ( $Q_{\text{Trans}} = 0,047 \cdot \exp(-i \cdot 33^\circ)$ )

und longitudinale ( $Q_{\text{Trans}} = 0,047 \cdot \exp(-i \cdot 33^\circ)$ ) Geometrie separat bestimmt. Zur Berechnung von  $\zeta$  werden die optischen Parameter als konstant über die Probe angesehen. Jedoch kann dies durch das Wachstum auf Kupfer experimentell abweichen. Kobalt wächst anfänglich in einer fcc-Struktur und geht anschließend in eine hcp-Struktur über [67-69]. Dies kann sich auf die optischen Parameter auswirken [70].

In Abbildung 4.5 sind die berechneten normierten MOKE-Sensitivitäten  $\zeta$ , für Schichtdicken im Bereich von  $4 \text{ nm} \leq d \leq 20 \text{ nm}$ , der in dieser Arbeit untersuchten Proben Co/Cu(001) dargestellt. Die Sensitivitäten weisen für die Kerrrotation und Kerrelliptizität bis  $d = 20 \text{ nm}$  eine klare Systematik auf. Beide Sensitivitäten sind an der Oberfläche positiv und fallen mit der Probentiefe ab, für  $\theta$  gibt es für  $d = 20 \text{ nm}$  einen Bereich mit negativer Sensitivität an der Grenzfläche zu Kupfer. Bemerkenswert ist aber, dass beide Sensitivitäten ein unterschiedliches Tiefenverhalten haben. **Die Kerrrotation  $\theta$  hat eine höhere Sensitivität an der Oberfläche als die Kerrelliptizität  $\varepsilon$ , im Bereich der Grenzfläche ist es entgegengesetzt.** Mit wachsender Schichtdicke werden diese Unterschiede stärker, dies hängt mit dem längeren Propagationsweg des Lichtes in der Materie zusammen. Dieses Verhalten ist entscheidend für die Untersuchung der laserinduzierten Dynamik. Durch relative Änderungen der Messgrößen untereinander können verschiedene Arten von Magnetisierungsprofilen unterschieden und damit Rückschlüsse über die verursachenden Mechanismen gemacht werden, siehe Kapitel 6.

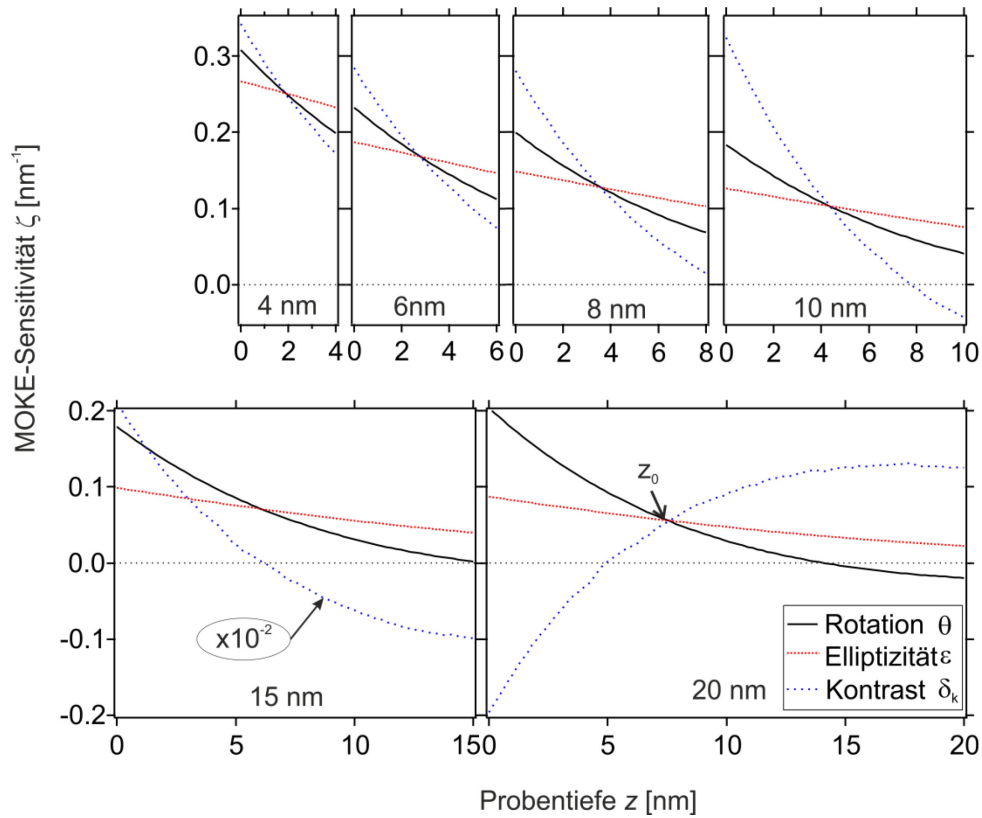


Abbildung 4.5: **Normierte MOKE-Sensitivitäten für Co/Cu(001)**. Die Sensitivitäten wurden mit Formel (4.9) und (4.10) berechnet. Es sind die Sensitivitäten für die Kerrrotation  $\theta$  (schwarz), Kerrelliptizität  $\varepsilon$  (rot) und dem magnetischen Kontrast  $\delta_k$  (blau) dargestellt. Der Schnittpunkt der Sensitivitäten von  $\theta$  und  $\varepsilon$  wird durch  $z_0$  gekennzeichnet.

Die Schichtdickenabhängigkeit der Sensitivität von  $\delta_k$  für  $d \leq 10$  nm weist große Ähnlichkeit mit der von  $\theta$  und  $\varepsilon$  auf, siehe Abbildung 4.5.  $\delta_k$  besitzt eine hohe Sensitivität für oberflächennahe Bereiche, welche schnell mit der Probentiefe abnimmt. Das Verhalten für  $d = 15$  und  $20$  nm dagegen ist fundamental anders. Die Sensitivität  $\zeta$  von  $\delta_k$  für  $d = 15$  nm ist um zwei Größenordnungen größer als für andere Schichtdicken, dies entsteht durch die Normierung auf den Gleichgewichtswert  $\delta_k$ . Für  $d = 15$  nm liegt der Wert von  $\delta_k$  in der Größenordnung von  $10^{-6}$ , wodurch die Werte von  $\zeta$  stark ansteigen. Für die übrigen untersuchten Werte ist  $\delta_k$  in der Größenordnung von  $10^{-4}$ . Die Sensitivität von  $\delta_k$  für  $d = 20$  nm hat einen Bereich mit negativer Sensitivität an der Oberfläche. Tiefer liegende Bereiche innerhalb der Schicht tragen mit unterschiedlichen Vorzeichen zu  $\delta_k$  bei, wodurch

die negativen Bereiche entstehen. Dieser Effekt entsteht durch die Propagation des Lichtes in der Materie und wird in Kapitel 6.1 anhand der Schichtdickenabhängigkeit von  $\delta_k$  diskutiert.

Die genauen optischen Parameter für das untersuchte System sind nicht bekannt, weshalb die verwendeten optischen Parameter zur Berechnung der MOKE-Sensitivität abweichen können, siehe oben. Trotz dieser Ungenauigkeiten ändert sich nichts an den qualitativen Zusammenhängen von  $\delta_k$ ,  $\theta$  und  $\varepsilon$ , dies folgt aus der statischen Schichtdickenabhängigkeit von  $\theta$ ,  $\varepsilon$  und  $\delta_k$ . Die statische Schichtdickenabhängigkeit der Observablen des Kerreffektes und die Auswirkungen auf die Sensitivitäten werden in Kapitel 6.1 diskutiert.

### 4.7. Erzeugung der zweiten Harmonischen

Die Wechselwirkung von Licht mit Materie wird klassisch mit der Maxwellgleichung

$$\Delta \vec{E} + \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \vec{E} = -\frac{4\pi}{c} \partial_t^2 \vec{P} \quad (4.24)$$

beschrieben, wobei auf der rechten Seite der Gleichung die Polarisation  $\vec{P}$  steht, welche als Quellterm für das elektrische Feld dient. In der linearen Optik, in welcher Reflektion, Transmission und der magnetooptische Kerreffekt sehr gut erklärt werden, ist die Polarisation proportional zum elektrischen Feld. Bei hohen Lichtintensitäten ( $I \geq 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ) treten höhere Ordnungen mit  $\vec{E}$  in  $\vec{P}$  auf, wodurch Effekte entstehen, die mit der nichtlinearen Optik beschrieben werden [71-74]. Ein Effekt ist die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG: Second harmonic generation), d.h., die Erzeugung von Licht mit der doppelten Lichtfrequenz  $2\omega$  wie das Einfallende. Für den Quellterm  $\vec{P}$ , im Frequenzraum, der zweiten Harmonische (SH) gilt:

$$P_i(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega; \omega) \cdot E_j(\omega)E_k(\omega), \quad (4.25)$$

wobei über doppelte Indizes summiert wird und  $\tilde{\chi}^{(2)}$  die Suszeptibilität zweiter Ordnung eine materialspezifische Funktion ist. In zentrosymmetrischen Systemen ist die Suszeptibilität, aus Symmetriegründen, identisch null  $\tilde{\chi}^{(2)} \equiv 0$ . Es kann keine SH in diesen erzeugt werden. An Grenzflächen ist diese Symmetrie gebrochen, wodurch die SH an dieser erzeugt werden kann und extrem grenzflächensensitiv ist. Kobalt und Kupfer sind beide zentrosymmetrisch, so dass bei Co/Cu(001) nur an der Oberfläche und an der Grenzfläche zwischen Kobalt und Kupfer die SH erzeugt werden kann.

Für magnetische Systeme kann die Suszeptibilität als Summe von zwei Beiträgen geschrieben werden, eines nichtmagnetischen  $\tilde{\chi}_{\text{even}}$  und eines magnetischen  $\tilde{\chi}_{\text{odd}}$  Teils

$$\tilde{\chi}^{(2)} = \tilde{\chi}_{\text{even}}^{(2)} + \tilde{\chi}_{\text{odd}}^{(2)}, \quad (4.26)$$

wobei sich die Bezeichnung even (gerade) und odd (ungerade) auf das Verhalten bei einer Magnetisierungsumkehrung bezieht,

$$\tilde{\chi}_{\text{even}}^{(2)}(M) = \tilde{\chi}_{\text{even}}^{(2)}(-M) \quad (4.27)$$

$$\tilde{\chi}_{\text{odd}}^{(2)}(M) = -\tilde{\chi}_{\text{odd}}^{(2)}(-M).$$

In Formel (4.25) können die Indizes j,k vertauscht werden, wodurch sich die Anzahl der Tensorelemente in  $\tilde{\chi}^{(2)}$  von ursprünglich 27 auf 18 Unabhängige reduzieren lässt und die Formel in eine Matrixengleichung umgeschrieben werden kann:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & \chi_{xzy} & \chi_{xzx} & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & \chi_{yzy} & \chi_{yzx} & \chi_{yyx} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & \chi_{zzy} & \chi_{zzx} & \chi_{zxy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{pmatrix}. \quad (4.28)$$

Aufgrund von Symmetrieeigenschaften kann die Anzahl noch weiter reduziert werden. Eine ausführliche Erläuterung ist in [73] gegeben. Die untersuchten Oberflächen in dieser Arbeit weisen eine 4mm-Symmetrie ohne Magnetisierung auf. Es ergeben sich folgende Suszeptibilitäten:

**Nichtmagnetischer Anteil:**

$$\chi_{\text{even}}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xzx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{yzy} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.29)$$

**Magnetischer Anteil**

Longitudinale Geometrie:

$$\hat{\chi}_{\text{odd}}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{zzy} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.30)$$

Transversale Geometrie:

$$\hat{\chi}_{\text{odd}}^{(2)} = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yxy} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zzx} & 0 \end{pmatrix} \quad (4.31)$$

Polare Geometrie:

$$\hat{\chi}_{\text{odd}}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \chi_{xzy} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{yzz} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{zxy} \end{pmatrix} \quad (4.32)$$

**4.7.1. Messgröße für laserinduzierte Dynamik**

In dieser Arbeit wird die Erzeugung der SH zur Untersuchung von zeitaufgelösten Oberflächeneffekten verwendet, siehe Kapitel 7, dazu wird die Variation der Intensität der SH

verwendet. Die Intensität der SH  $I_{2\omega}$  ist proportional zum Quadrat der Intensität der Fundamentalen  $I_\omega$ . Es gilt:

$$I_{2\omega}^{\uparrow\downarrow}(\omega) \propto |A\tilde{\chi}_{\text{even}}^2 \pm B\tilde{\chi}_{\text{odd}}^{(2)}|^2 \cdot I_\omega^2, \quad (4.33)$$

wobei  $A\tilde{\chi}_{\text{even}}^{(2)}$  und  $B\tilde{\chi}_{\text{odd}}^{(2)}$  Linearkombinationen von Fresneffaktoren  $(A, B)$  und Tensorelemente  $(\tilde{\chi}_{\text{even}}, \tilde{\chi}_{\text{odd}})$  sind [75]. Die Pfeile und das Vorzeichen kennzeichnen die unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen. Aus Formel (4.33) ergibt sich die Intensität als Funktion der elektrischen Felder  $E$ :

$$I_{2\omega}^{\uparrow\downarrow} = |E_{\text{even}}|^2 + |E_{\text{odd}}|^2 \pm |E_{\text{even}}| \cdot |E_{\text{odd}}| \cdot \cos(\Delta\alpha) \quad (4.34)$$

wobei  $E_{\text{even}}$  der nichtmagnetische und  $E_{\text{odd}}$  der magnetische Beitrag des elektrischen Feldes der SH und  $\Delta\alpha$  die Phase zwischen beiden Feldern ist. Bei einer Magnetisierungsumkehr entsteht ein Kontrast in der Intensität.

Zur Analyse der Grenzflächendynamik werden die folgenden Werte gebildet [76]:

$$D^\pm(t) = \frac{I_{2\omega}^\uparrow(t) \pm I_{2\omega}^\downarrow(t)}{I_{2\omega,0}^\uparrow \pm I_{2\omega,0}^\downarrow}, \quad (4.35)$$

$$\Delta_{\text{even}} = \sqrt{D^+(t)} - 1 \approx \frac{|\tilde{\chi}_{\text{even}}^2(t)|}{|\tilde{\chi}_{\text{even},0}^2|} - 1, \quad (4.36)$$



und

$$\Delta_{odd} = \frac{D^-(t)}{\sqrt{D^+(t)}} - 1 \approx \frac{|\tilde{\chi}_{odd}^2(t)|}{|\tilde{\chi}_{odd,0}^2|} \cdot \frac{\cos(\Delta\alpha(t))}{\cos(\Delta\alpha_0)} - 1 \propto \frac{M(t)}{M_0} - 1, \quad (4.37)$$

wobei  $\Delta\alpha(t)$  die Phase zwischen  $\tilde{\chi}_{even}^{(2)}$  und  $\tilde{\chi}_{odd}^{(2)}$  ist. Der Index „0“ kennzeichnet Werte vor der Laseranregung. Der Ausdruck  $\Delta_{even}$  ist empfindlich auf die Dynamik des elektronischen Systems, wie zum Beispiel Elektronenumverteilung und Modifikation von elektronischen Zuständen.  $\Delta_{odd}$  ist auf Variationen des magnetischen Systems empfindlich, wobei der Ausdruck proportional zur Magnetisierung ist. Eine Modifikation des elektronischen Systems kann sich ebenfalls auf diesen auswirken und muss anhand von Ergebnissen diskutiert werden.



# 5. Experimentelles

Zur Untersuchung von ultraschnellen dynamischen Prozessen, im Femtosekunden- bis Pikosekundenbereich, wird in dieser Arbeit die Pump-Probe Technik verwendet, wobei elektronische und magnetische Eigenschaften mit Hilfe von optischen und magnetooptischen Methoden abgefragt werden. Es werden die Erzeugung der magnetischen zweiten Harmonischen (SHG) und der magnetooptische Kerreffekt (MOKE), sowie Reflexionsmessungen verwendet. Damit stehen eine grenzflächenempfindliche (SHG) und eine über die optische Eindringtiefe empfindliche Methode (MOKE) zur Verfügung, siehe Kapitel 4. Im ersten Teil dieses Kapitels wird der Pump-Probe Aufbau vorgestellt.

Der zweite Teil dieses Kapitels beschäftigt sich mit der Präparation und Charakterisierung der Proben, dünne Schichten von Kobalt auf einem Kupfersubstrat Co/Cu(001) mit unterschiedlicher Schichtdicke. Zur Einschränkung von Kontaminationen und Oxidation der Probe wurden die Proben *in-situ* im Ultrahochvakuum (UHV) hergestellt und untersucht.

## 5.1. Pump-Probe-Schema

In Abbildung 5.1 ist der verwendete experimentelle Aufbau dargestellt.

### Laser

Die ultrakurzen Laserpulse zur Untersuchung der zeitaufgelösten Dynamik werden von einem **Titan:Saphir-Oszillator** geliefert. Eine ausführliche Beschreibung der Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen ist in Referenz [13, 77, 78] gegeben. Zur Erzeugung von höheren Spitzenenergien pro Impuls wird der Oszillator im sogenannten Cavity-Dump-Modus

betrieben, bei dem der Resonator geschlossen ist. Die Resonatorspiegel haben eine geringe Transmission. Ein Spiegel hat eine Transmission von ca. 4% für die Versorgung einer Referenzdiode, der zweite ist hoch reflektierend, wodurch höhere Pulsenergien im Resonator auf Grund von geringeren Verlusten erzeugt werden. Zur Auskopplung der Laserpulse wird ein opto-akustischer Kristall im Resonator verwendet. In diesem Kristall wird durch Induktion einer akustischen Welle eine periodische Modulation des Brechungsindex generiert, mit dem der Laserpuls aus seinem ursprünglichen Strahlengang abgelenkt und über einen Auskoppelspiegel aus dem Laser geführt wird.

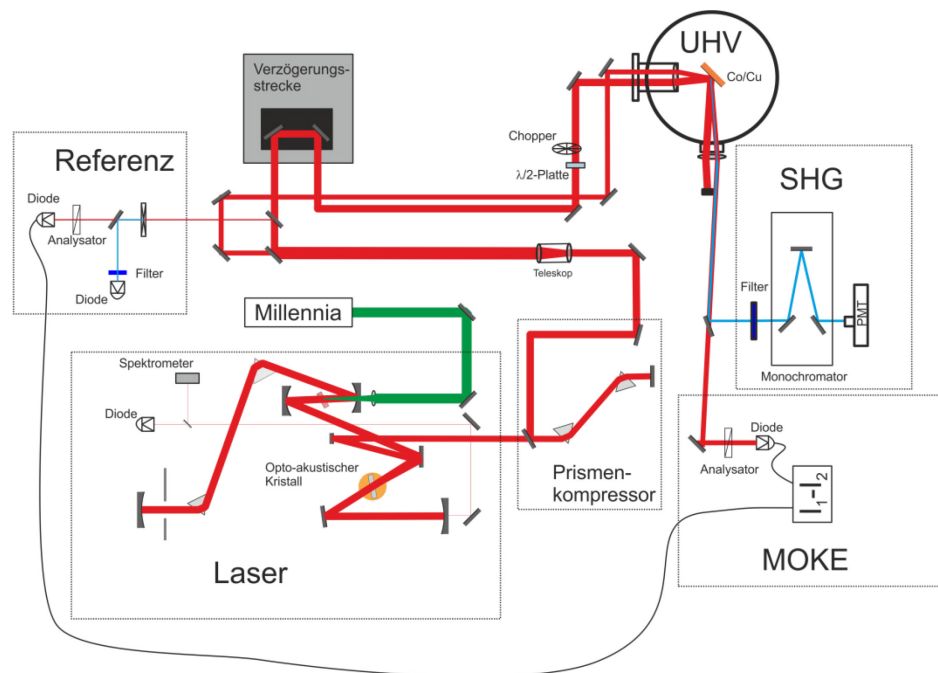


Abbildung 5.1: **Pump-Probe-Schema.** Der optische Aufbau besteht aus einem Titan:Saphir-Oszillator zur Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen, einem Prismenkompressor zur Kompensation von GVD (group velocity dispersion), einer Referenzstrecke zur Kontrolle der Laserstabilität und einigen optischen Elementen zur Modifizierung des Strahlengangs. Die Probe Co/Cu(001) befindet sich in einer UHV-Umgebung. Zur Untersuchung der laserinduzierten Dynamik werden die zweite Harmonische und der magnetooptische Kerreffekt detektiert. In der Abbildung ist der Aufbau zur Detektion des transversalen Kerreffekts dargestellt, der Aufbau für den longitudinalen Kerreffekt wird separat in Abbildung 4.1 gezeigt.

### **Prismenkompressor**

Aufgrund von Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD: group velocity dispersion), d.h. unterschiedlicher Ausbreitungsgeschwindigkeit von Wellenpaketen abhängig von der Wellenlänge, können sich Laserpulse beim Durchlaufen von Materie zeitlich verbreitern. Zur Kompensation der GVD von optischen Elementen im Strahlengang, wie zum Beispiel Linsen und Fenstern, ist nach dem Oszillator ein Prismenkompressor installiert, in dem durch unterschiedliche Wegstrecken für verschiedene Wellenlängen eine negative GVD eingestellt werden kann [13, 77, 78]. Für transparente Materialien ist die GVD im sichtbaren Spektralbereich vorwiegend positiv. Die Kompensation ist vor dem Durchlaufen der optischen Elemente möglich, so dass die minimale Impulsdauer an der Probenoberfläche eingestellt werden kann.

### **Optische Wegstrecke**

Nach dem Prismenkompressor durchläuft der Laserstrahl ein Teleskop, in dem der Strahldurchmesser zur besseren Fokussierbarkeit aufgeweitet wird. Anschließend ist ein Strahlteiler mit dem Verhältnis 4:1 aufgebaut, der die Laserpulse in Pump- und Probepulse separiert, die daraufhin unterschiedliche optische Wege durchlaufen. Der Probestrahl wird transmittiert und der Pumpstrahl reflektiert. Zur Versorgung einer Referenzstation und als Ausgleich der zusätzlichen Wegstrecke im Probestrahl, durch den ersten Strahlteiler, ist im Pumpstrahl ein zweiter Strahlteiler platziert. Der Pumpstrahl wird transmittiert und der Referenzstrahl reflektiert. Beide Strahlen, Probe und Pump, werden nach den Strahlteilern zur Vakuumkammer abgelenkt, wobei die Laufstrecke des Pumpstrahls in einer Verzögerungstrecke variiert werden kann. Durch die unterschiedlichen Laufzeiten der Pump- und Probepulse kann die relative Verzögerungszeit der Pulse auf der Oberfläche eingestellt werden. Im Strahlengang der Pumppulse ist zusätzlich ein Chopper und eine  $\lambda/2$ -Platte installiert. Der Chopper blockiert die Pumpstrahlen periodisch und ermöglicht so einen direkten Vergleich zwischen angeregten und nichtangeregten Messwerten. Mit der  $\lambda/2$ -Platte kann die Polarisation der Pumpstrahlung gedreht werden.

Pump- und Probepulse werden beide mit derselben Linse ( $f = 10$  mm) auf die Probenoberfläche innerhalb der Vakuumkammer fokussiert. Der grobe räumliche Überlapp der Strahlen wird mit einem Teleskop und einer CCD-Kamera kontrolliert. Zur Feinjustage wird die Autokorrelationsfunktion (AKF) verwendet, siehe weiter unten. Alle wichtigen Parameter der Strahlen auf der Oberfläche sind in Tabelle 5.1 aufgelistet. Zur Berechnung der Pumpfluenz wurde die fokussierte Strahlung separat mit einem Objektiv abgebildet, siehe Abbildung 5.2. Während der Reflexion wird die zweite Harmonische an der Oberfläche erzeugt und zur Analyse der Dynamik verwendet, siehe Kapitel 4.7. Die Richtung und das Umkehren der Magnetisierung der Probe werden mit einem Elektromagneten innerhalb der Kammer vorgenommen.

Pulsdauer	$\tau=26$ fs
Repetitionsrate	$f=2,53$ MHz
Zentrale Wellenlänge	$\lambda=800$ nm (1,55 eV)
Eingestrahlte Pumpfluenz	$F=6$ mJ/cm <sup>2</sup>
Energie pro Pumpuls	$E_{\text{Pump}}=27$ nJ
Energie pro Probepuls	$E_{\text{Probe}}=8$ nJ

Tabelle 5.1: **Parameter der fokussierten Strahlung.** In der Tabelle sind die Parameter der fokussierten Strahlung auf der Oberfläche aller zeitaufgelösten Messungen dieser Arbeit aufgelistet. Zur Bestimmung der Fluenz wurde eine Abbildung der fokussierten Strahlung gemacht, siehe Abbildung 5.2. Die Pulsdauer wurde anhand der Autokorrelationsfunktion (AKF) bestimmt, siehe Abbildung 5.3.

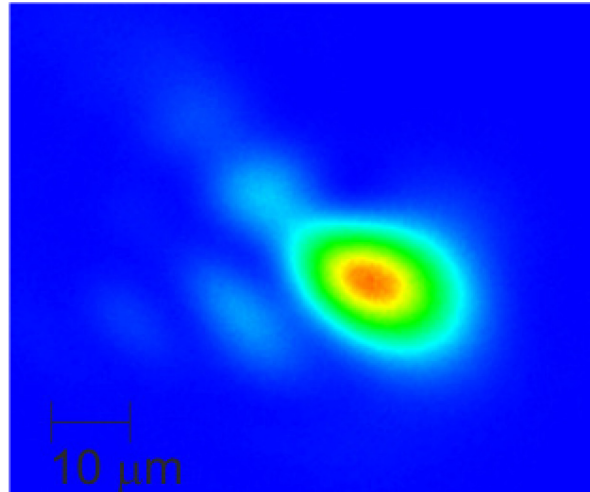


Abbildung 5.2: **Fokussierte Strahlung.** Die Abbildung wurde mit einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,3 aufgenommen. Zur Kalibrierung der Vergrößerung wurde eine Lochblende von  $50\ \mu\text{m}$  verwendet. Die Halbwertsbreite (FWHM) in horizontaler Richtung beträgt  $19\ \mu\text{m}$  und in vertikaler Richtung  $14\ \mu\text{m}$ . Zur Berechnung der Fluenz wird die Halbwertsfläche verwendet. Die Halbwertsfläche entspricht der Fläche, in der die Laserintensität mindestens die halbe Maximalintensität beträgt.

Nach der Reflektion wird der Probestrahl mit einer Sammellinse außerhalb der Kammer fokussiert und der Pumpstrahl blockiert. Die Linse macht eine Abbildung von der Probenoberfläche in den Detektor, wobei die Fundamentale und die zweite Harmonische separiert detektiert werden. Zur Separation ist nach der Linse ein dichroitischer Spiegel platziert, der die zweite Harmonische reflektiert und die Fundamentale transmittiert.

### **Detektion der zweiten Harmonischen**

Die Detektion der zweiten Harmonischen erfolgt im Einzelphotonennachweis, wozu ein Photomultiplier und ein Photocounter benutzt werden, dies ist auf Grund der geringen Intensitäten erforderlich. Abhängig von der Kontamination und der Dicke der Probe werden ca.  $10^3$ - $10^5$  Photonen pro Sekunde vom Probestrahl detektiert, das sind ungefähr  $10^{-4}$ - $10^{-1}$  Photon pro Laserpuls. Zur Unterdrückung von Umgebungslicht wird das Eingangssignal des

Photomultipliers mit Hilfe eines Monochromators und eines 2 mm dicken BK39-Filters gefiltert.

Mit Hilfe eines Photocounters und eines Computers werden die Intensitäten der zweiten Harmonischen bestimmt, die von der ungestörten und angeregten Probe erzeugt werden. Mit den Intensitäten ist die Berechnung der Größen  $\Delta_{\text{even}}$  und  $\Delta_{\text{odd}}$  möglich, welche auf die Dynamik des elektronischen und magnetischen Systems empfindlich sind, siehe Kapitel 4.7.1.

### **Autokorrelationsfunktion**

In Kapitel 6 werden anhand von relativen Änderungen der Kerrrotation und Kerrelliptizität zueinander Rückschlüsse über physikalische Prozesse und deren zeitliches Auftreten nach der laserinduzierten Anregung geschlossen, dabei ist eine absolute Bestimmung des Zeitnullpunktes von entscheidender Bedeutung. Aus diesem Grund wird vor jeder zeitaufgelösten Messung die Autokorrelation [13] mittels der zweiten Harmonischen gemessen.

### **Referenzstrecke**

Zur Kontrolle der Laserstabilität ist eine Referenzstrecke aufgebaut. In der Referenzstrecke wird innerhalb eines BBO-Kristalls die zweite Harmonische erzeugt und die Intensität mit einer Diode gemessen. Zur Separation der Fundamentalen werden ein dichroitischer Spiegel und ein BK-Filter verwendet. Durch die Messungen der zweiten Harmonischen werden neben Intensitätsschwankungen auch Schwankungen im Laserprofil und in der Pulsdauer detektiert.

Für die Messungen in der transversalen Geometrie wurde zusätzlich eine Diode als Referenz installiert, siehe Kapitel 5.1.2.



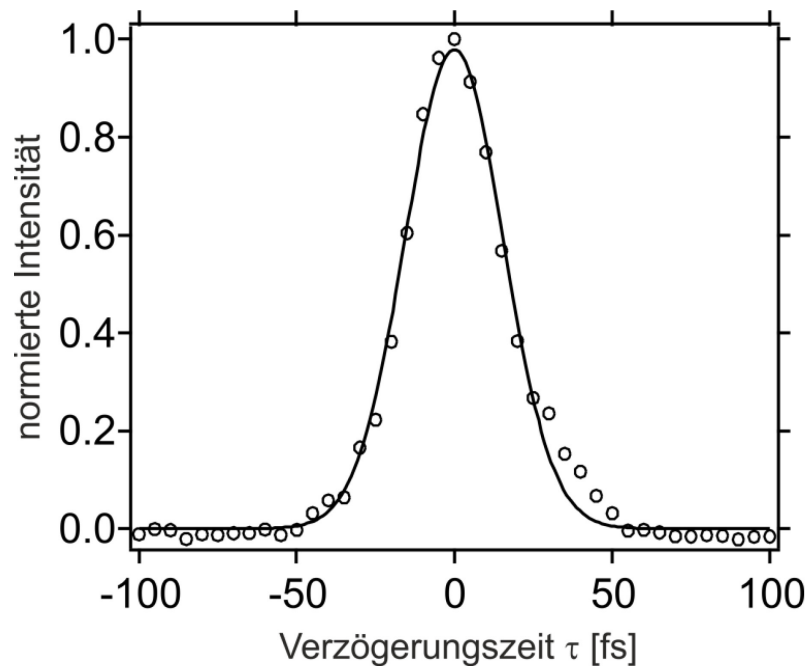


Abbildung 5.3: **Autokorrelationsfunktion.** Zur Bestimmung des Nullzeitpunktes der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepulsen wurde vor jeder Messung die Autokorrelationsfunktion gemessen. Die Daten (Kreise) wurden mit einer Gaußfunktion (Kurve), mit einer Halbwertsbreite von 35 fs, gefittet. Nach Referenz [77] ergibt diese Halbwertsbreite eine Pulsdauer von  $\Delta\tau = 26$  fs.

### 5.1.1. Einfluss des Kohärenten Artefakts

In den zeitaufgelösten Messungen, Reflektion- und MOKE-Messungen, ist ein Effekt, das sogenannte „kohärente Artefakt“ aufgetreten und hat diese stark beeinflusst [79]. Das kohärente Artefakt ist ein nichtlinearer Effekt dritter Ordnung, der im Bereich des zeitlichen Überlapps von Pump- und Probepulsen entsteht. Die Pumppulse modifizieren mit der Laserfrequenz periodisch den Brechungsindex des Mediums, wodurch sich die Reflektion modifiziert wird, siehe Abbildung 6.3. Diese Modifikationen treten ebenfalls im magnetischen Kontrast und im komplexen Kerrwinkel auf, spiegeln aber nicht die Magnetisierungsdynamik wieder und sind deshalb unerwünscht. Die Einflüsse des kohärenten Artefaktes lassen sich im

transversalen Fall durch gekreuzte Polarisierung von Pump- und Probestrahl minimieren, im longitudinalen Fall werden diese dagegen damit verstärkt. In der transversalen Geometrie wurde aus diesem Grund die Polarisierung des Pumpstrahles auf s-Polarisierung gedreht. Für Messungen in der longitudinalen Geometrie wurden p-polarisierte Pumppulse verwendet. Der Probestrahl ist für beide Geometrien p-polarisiert.

Zur weiteren Minimierung des kohärenten Artefakts wurde versucht, die periodischen Modifikationen heraus zu mitteln. Dazu wurde jeweils ein Wert vor und nach der gewünschten Verzögerungszeit von einem Viertel der Periodendauer (0.6 fs) aufgenommen und der Mittelwert aus diesen Werten gebildet. Dieses Vorgehen wurde innerhalb des zeitlichen Überlapps vorgenommen.

### 5.1.2. MOKE Signal

Die Wechselwirkung des Lichtes mit der Magnetisierung in der transversalen und longitudinalen Geometrie hat unterschiedliche Auswirkungen auf die reflektierte Strahlung an einer magnetischen Oberfläche. In der longitudinalen Geometrie verschiebt sich die Polarisierung des Lichtes von linear zu elliptisch und in der transversalen Geometrie entsteht eine zusätzliche Reflexionskomponente, dies führt zu einem magnetischen Kontrast bei einer Magnetisierungsumkehr, siehe Kapitel 4. Hierdurch sind unterschiedliche experimentelle Aufbauten für die Detektion in den verschiedenen Geometrien nötig.

Für die transversale Geometrie wurde eine Reflexionsmessung durchgeführt, wobei die Intensität der reflektierten Probestrahlung mit Hilfe einer Messdiode gemessen wurde, siehe Abbildung 5.1. Um einen höheren Sensitivitätsbereich für die Messung nutzen zu können, wurde eine Referenzdiode in den Referenzstrahl des Lasers gestellt und die Differenz zwischen den beiden Dioden gebildet. Vor der Messdiode wurde ein Analysator platziert, der die restliche s-polarisierte Pumpstrahlung herausfiltert. Die Intensität auf der Referenzdiode wurde mit einem Analysator eingestellt. Zur Normierung wurde die Spannung der Referenzdiode gemessen und nach der Messung zum Messsignal hinzuaddiert.

In der longitudinalen Geometrie ist eine Polarisationsmessung nötig, wozu das Balance-detection Schema verwendet wurde, siehe Abbildung 5.4. Mit einem Wollaston-Prisma wird das reflektierte Licht von der Probe in zwei Strahlen, dem ordentlichen und außerordentlichen Strahl, mit zueinander senkrechten linearen Polarisationen mit annähernd gleichen Intensitäten zerlegt. Der Winkel zwischen der Polarisationsrichtung des ordentlichen Strahls und der des reflektierten beträgt ca.  $\alpha \approx 45^\circ$ . Die Intensitäten beider Strahlen werden jeweils mit einer Diode gemessen und innerhalb eines Verstärkers die Differenz der Signale gebildet. Für das Differenzsignal  $\Delta U$  gilt:

$$\Delta U^{\uparrow\downarrow} \propto 2 \cdot |r_{pp}|^2 \left\{ \Delta\alpha \pm \frac{|r_{sp}|}{|r_{pp}|} \cdot \cos(\Delta\varphi) \right\}, \quad (5.1)$$

wobei das Signal für kleine Abweichungen  $\Delta\alpha$  um einen Winkel von  $\alpha = 45^\circ$  entwickelt wurde,  $r_{sp}$  und  $r_{pp}$  sind die Reflexionskoeffizienten der Probe und  $\Delta\varphi$  die Phasendifferenz zwischen diesen, siehe Tabelle 4.1. Die Pfeile in  $\Delta U^{\uparrow\downarrow}$  kennzeichnen die unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen und der zweite Term in der Gleichung wechselt bei einer Magnetisierungsumkehr sein Vorzeichen. Der zweite Term entspricht der Kerrrotation und kann durch eine Differenzbildung extrahiert werden:

$$\theta = \frac{|r_{sp}|}{|r_{pp}|} \cdot \cos(\Delta\varphi) \propto \Delta U^{\uparrow} - \Delta U^{\downarrow}. \quad (5.2)$$

Um den Winkel  $\theta$  absolut zu bestimmen, wird das Differenzsignal  $\Delta U$  durch eine Drehung des Wollaston-Prismas kalibriert.

Zur Messung der Kerrelliptizität wird eine  $\lambda/4$ -Platte, mit der schnellen Richtung parallel zum optischen Tisch, vor das Wollaston-Prisma in den Strahlengang gestellt. Dadurch wird eine Phasenverschiebung von  $\Delta\varphi$  um  $\pi$  erreicht und  $\cos(\Delta\varphi)$  in Formel (4.5) wird zu  $\sin(\Delta\varphi)$ , so dass der zweite Term der Kerrelliptizität entspricht.

Zur Messung der Reflektivität wird eine zusätzlichen Diode und ein Strahlteiler installiert.

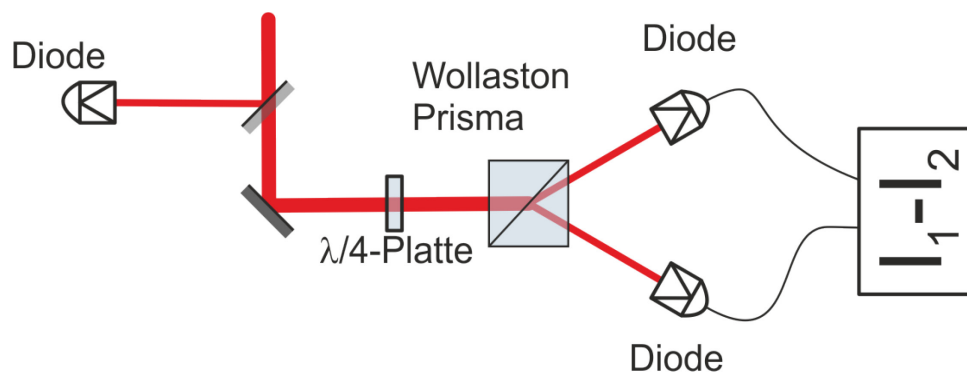


Abbildung 5.4: **Aufbau zur Detektion des komplexen Kerrwinkels.** Das reflektierte Licht von der Probe wird durch ein Wollaston-Prisma in zwei Strahlen mit senkrechter Polarisierung zerlegt und die Intensität mit zwei Dioden gemessen. Aus dem Differenzsignal kann die Kerrrotation berechnet werden. Durch eine  $\lambda/4$ -Platte ist die Detektion der Kerrelliptizität möglich. Die Reflektivität wird mit einer zusätzlichen Diode gemessen.

Mit Hilfe eines LockIn-Verstärkers und eines Digitalkonverters werden die Diodensignale gemessen und die Änderung der Reflektivität  $R$ , des magnetischen Kontrastes  $\delta_k$ , der Kerrrotation  $\theta$  und der Kerrelliptizität  $\varepsilon$  berechnet. Die Werte werden auf ihre ungestörten Werte vor der optischen Anregung normiert.

## 5.2. Probenpräparation

Dieses Unterkapitel beschäftigt sich mit der Präparation der Proben Co/Cu(001). Das Wachstum von dünnen Kobaltschichten auf der (001)-Oberfläche eines Kupfereinkristalls ist in der Literatur gut bekannt [67-69, 80-82]. Kobalt wächst epitaxial auf Kupfer. Dieses Kapitel umfasst die wichtigen Präparationsschritte und Parameter.

Die Proben werden *in-situ* in einer Vakuumkammer mit einem Basisdruck von  $P \approx 5 \cdot 10^{-11}$  mbar hergestellt. Die Vakuumkammer wurde ebenfalls für frühere Arbeiten verwendet und ist ausführlich in diesen beschrieben [83, 84].

Vor dem Aufdampfen der Kobaltschichten wurde das Kupfersubstrat durch mehrere Zyklen von Sputtern und anschließendem Annealing präpariert. Beim Sputtern wird die Kupferoberfläche 10 Minuten mit hochenergetischen (1.5 keV) Argonionen beschossen und so von Fremdatomen befreit. Beim anschließenden Annealing wird eine glatte Oberfläche durch Aufheizen der Probe rekonstruiert. Die Probe wird durch einen Strom (7,5 A) auf 300°C aufgeheizt und anschließend 10 Minuten auf dieser Temperatur gehalten. Nachdem die Probe auf ca. 80°C abgekühlt ist, wurde mit dem Aufdampfen begonnen.

Zur Herstellung der Proben wurden zwei unterschiedliche Verdampfer verwendet, ein Elektronenstrahlverdampfer und ein Tiegelverdampfer. Der Elektronenstrahlverdampfer ist von der Firma Omicron mit der Modelbezeichnung EFM3, der Tiegelverdampfer wurde an der FU Berlin als Eigenbau hergestellt. In beiden Verdampfern wurden dünne Kobaltstäbe mit einer Reinheit von 99,99% verdampft, wobei Elektronen mit Hilfe einer Hochspannung beschleunigt werden und zum Aufheizen der Kobaltstäbe dienen. Im Elektronenstrahlverdampfer werden die Elektronen direkt auf den Kobaltstab beschleunigt und im Tiegelverdampfer wird ein Tiegel aufgeheizt, in dem sich Stücke des Kobaltstabes befinden. Bauformbedingt unterscheiden sich die Raumwinkel (Verdampferkegel) beider Verdampfer, was unterschiedliche Kalibrierungen der Verdampftrate notwendig macht.

Zur Kalibrierung des Tiegelverdampfers wird eine Quarzwaage verwendet, d.h. die Bedeckungen durch Verschiebung der Eigenfrequenz eines Quarzkristalles bestimmt [85]. Dazu wurde die Waage in den Verdampferkegel parallel zum Kupfersubstrat gestellt und die Frequenzänderungen während des Verdampfens gemessen. Theoretisch sind mit der Quarzwaage Bedeckungsänderungen von 0.01 nm detektierbar. Diese Genauigkeit wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht erreicht. Mit dem Tiegelverdampfer wurde eine Probe mit der Dicke  $d = 12,5$  nm hergestellt, jedoch weichen für diese Probe mehrere Messungen deutlich von der Systematik der anderen Proben ab. Die Werte der statischen und dynamischen Kerrwinkel und die Reflexionsmessungen legen nahe, dass die tatsächliche Probedicke größer als 20 nm ist, siehe Abbildung 6.1, Abbildung 6.6 und Abbildung A.1. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich im Aufheizen der Quarzwaage durch thermische Strahlung des Verdampfers, da die Waage keine aktive Kühlung besitzt. Temperaturänderungen verursachen ebenfalls eine Frequenzänderung und können so die Messungen verfälschen. Die Messungen dieser Proben werden mit der Bezeichnung  $d = 12,5$  nm präsentiert. In der Auswertung der Ergebnisse wird aber die Ungenauigkeit berücksichtigt und diskutiert.

Der Elektronenstrahlverdampfer konnte aus technischen Gründen nicht mit der Quarzwaage kalibriert werden. Stattdessen wurde ein Ionenstrom verwendet, der beim Verdampfen entsteht und vom Verdampfer detektiert wird. Der Strom ist proportional zur Verdampftrate [86]. Zur absoluten Dickenkalibrierung wurde das Einsetzen der ferromagnetischen Ordnung der Kobaltschicht bei Raumtemperatur verwendet, welche bei einer Bedeckungsdicke von 1.8 Monolagen (ML) stattfindet [80]. Dieser Übergang ist in der Literatur gut dokumentiert und kann leicht mit der zweiten Harmonischen detektiert werden.

# 6. Schichtdickenabhängige Spindynamik in Co/Cu(001)

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der ultraschnellen schichtdickenabhängigen Spindynamik in Co/Cu(001) und untersucht, welche Mechanismen dazu beitragen und zu welchen Zeiten dominieren. Durch Vergleich der unterschiedlichen transienten Verhalten von Kerrrotation  $\theta$ , Kerrelliptizität  $\varepsilon$  und des magnetischen Kontrasts  $\delta_k$  können, anhand der unterschiedlichen Tiefenabhängigkeiten, Rückschlüsse über die magnetischen Profile geschlossen werden, siehe Kapitel 4.4. Die Form der Profile ist charakteristisch für die unterschiedlichen Mechanismen und ermöglicht eine zeitliche Separation der dominierenden Effekte in der Spindynamik, siehe Kapitel 3. Es werden die magnetooptischen Kerreffekt Messungen vorgestellt und interpretiert. Die Interpretation der Ergebnisse wird durch eine Modellierung der Magnetisierungsdynamik und Berechnung der magnetooptischen Antwort unterstützt.

Es wird das unterschiedliche transiente Verhalten von Kerrrotation und Kerrelliptizität zur Analyse der Magnetisierungsprofile verwendet und nicht wie in vorherigen Veröffentlichungen [41-43] mit einer Variation der optischen Konstanten begründet. Eine Variation kann an dieser Stelle nicht ausgeschlossen werden. Dennoch kann davon ausgegangen werden, dass ein wesentlicher Teil der Dynamik durch die Profile bestimmt wird, wie eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse gezeigt, siehe Kapitel 6.4.

## 6.1. Statische Schichtdickenabhängigkeit

Dieses Unterkapitel beschäftigt sich mit der statischen Schichtdickenabhängigkeit der Observablen des Kerreffektes, der Kerrrotation  $\theta$ , der Kerrelliptizität  $\epsilon$  und des magnetischen Kontrasts  $\delta_k$ , für Co/Co(001). Anhand der statischen Messungen wird die Voigt-Konstante  $Q$  für die longitudinale und transversale Geometrie, siehe Abbildung 4.5, bestimmt und die generelle Form der MOKE-Sensitivität diskutiert. Experimentell werden die Kerrrotation  $\theta$ , die Kerrelliptizität  $\epsilon$  und der magnetische Kontrast  $\delta_k$  über die Laserintensität mit Hilfe von zwei Dioden bestimmt. Die Messungen ergaben, dass  $\theta$  und  $\epsilon$  für den untersuchten Schichtdickenbereich bis  $d = 20$  nm durchgehend positiv sind, jedoch ist ein Vergleich der absoluten Werte zwischen den unterschiedlichen Schichtdicken nicht möglich, da in den Messungen nur relative Änderungen der Diodensignale betrachtet werden, siehe Kapitel 5. Vor jeder Messung wurde der Strahlengang neu justiert und es konnte keine absolute Bestimmung gewährleistet werden. Weiterhin ändert sich die Reflektivität der Probe mit der Schichtdicke, die nicht genau berechnet werden kann, da keine genauen Werte für die Brechungsindizes vorliegen. Es liegen lediglich Werte für polykristalline Proben vor, die verwendeten Proben sind jedoch kristallin, siehe Kapitel 5.2. Aus diesen Gründen wurden zur Berechnung der Voigt-Konstante  $Q$  intensitätsunabhängige Werte verwendet. In der longitudinalen Geometrie wurde die Phase  $\tan \xi = \epsilon/\theta$  des komplexen Kerrwinkels  $\Phi = A \cdot e^{i\xi}$  und in der transversalen Geometrie wurde der magnetische Kontrast verwendet, siehe Formel (4.3) und (4.6). In Abbildung 6.1 sind die experimentellen Werte von  $\tan(\xi)$  und  $\delta_k$  gegenüber der Schichtdicke dargestellt. Der magnetische Kontrast  $\delta_k$  ist positiv und steigt monoton bis  $d = 8$  nm, für  $d = 20$  nm hat  $\delta_k$  einen negativen Wert. Die Werte von  $\tan(\xi)$  sind für den untersuchten Schichtdickenbereich durchgehend positiv, aber es fällt auf, dass der Wert von  $\tan(\xi)$  für die Dicke  $d = 12,5$  nm nicht in die Systematik der Kurve passt. Weiterhin weichen für diese Schichtdicke die experimentellen, zeitaufgelösten Daten, insbesondere die Reflexionsdaten, ebenfalls von der Systematik ab. Es gibt deutliche Anzeichen für eine Abweichung der Schichtdicke, siehe unten und Anhang A. Diese Probe



wurde mit Hilfe eines Tiegelverdampfers präpariert und nicht wie die übrigen mit einem Elektronenstrahlverdampfer, wodurch die Abweichung erklärt werden kann, siehe Kapitel 5.2. Aufgrund dieser Abweichungen wird diese Dicke bei der Bestimmung der magneto-optischen Konstante ausgeschlossen.

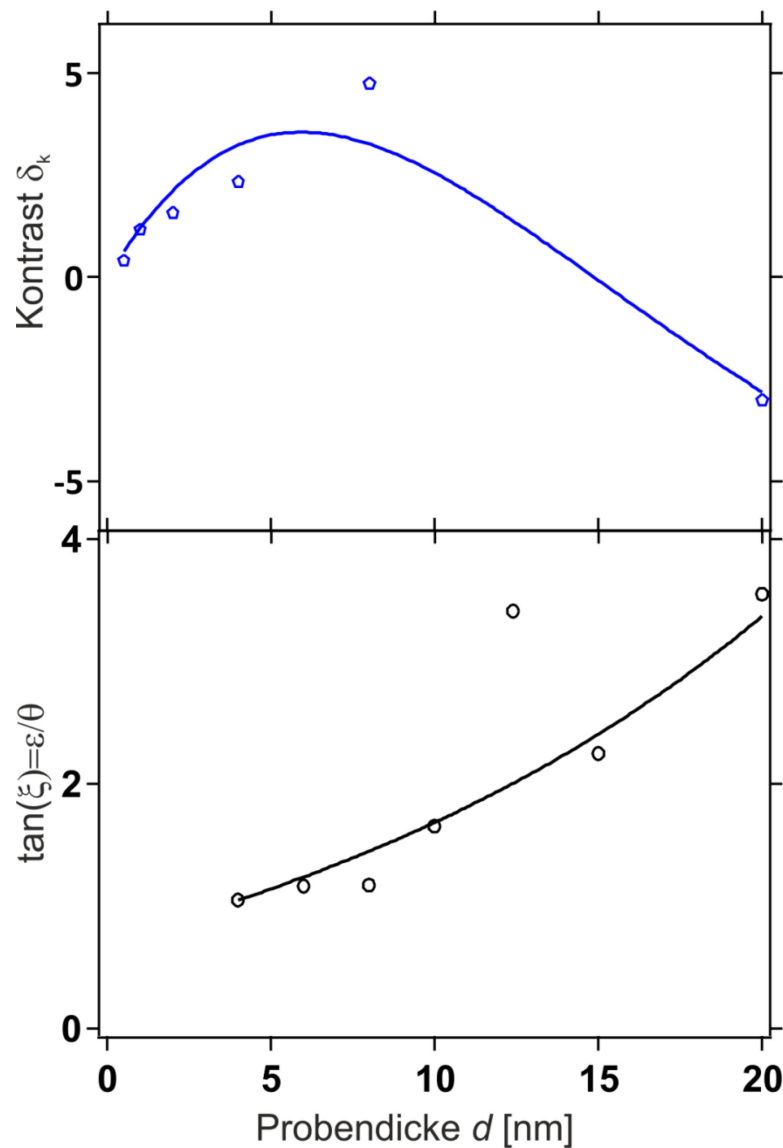


Abbildung 6.1: **Schichtdickenabhängige statische magnetooptische Antwort.** Im oberen Graph ist der magnetische Kontrast  $\delta_k$  (blaue Kreise) und im unteren die Phase  $\xi$  (schwarze Kreise) des komplexen Kerrwinkels dargestellt. Fits sind als durchgezogene Kurven dargestellt.

Zur Bestimmung der magneto-optischen Konstante wurden die Werte in Abbildung 6.1 als Funktion der Schichtdicke mit Hilfe des Matrixformalismus [12] gefittet, wobei im transversalen Fall  $Q$  und im longitudinalen Fall die Phase  $\alpha$  von  $Q = |Q| \cdot \exp(-i \cdot \alpha)$  als Fitparameter verwendet wurden. Im longitudinalen Fall wurde der Betrag von  $Q$  separat, wie im Kapitel 5 beschrieben, bestimmt. Dies wurde nur für eine Schichtdicke  $d = 15$  nm durchgeführt, da es aus experimentellen Gründen sehr aufwendig und eine absolute Bestimmung nicht relevant ist. Die normierte MOKE-Sensitivität  $\zeta$  ist unabhängig von  $|Q|$ . Die Bestimmung von  $Q$  liefert im transversalen Fall  $Q = 0,047 \cdot \exp(-i \cdot 33^\circ)$  und im longitudinalen Fall  $Q = 0,027 \cdot \exp(-i \cdot 48^\circ)$ .

Der komplexe Kerrwinkel  $\Phi$  und der magnetische Kontrast  $\delta_k$  sind die Quotienten des reflektierten magnetischen und nichtmagnetischen Lichtes, siehe Formel (4.3) und (4.5), wobei sich das Signal durch unterschiedliche Teilbeiträge innerhalb der Probe zusammensetzt, siehe Kapitel 4.4. Das reflektierte Licht ist eine elektromagnetische Welle, wodurch die einzelnen Beiträge, außerhalb der Probe, interferieren können. Im Folgenden wird der qualitative Verlauf der MOKE-Sensitivität anhand der statischen Schichtdickenabhängigkeit der Observablen des Kerreffektes diskutiert, siehe Abbildung 6.1.

Das monotone steigende Verhalten von  $\delta_k$  mit der Schichtdicke bis 8 nm, siehe Abbildung 6.1, zeigt, dass die Beiträge der unterschiedlichen Bereiche innerhalb der Probe konstruktiv interferieren, die MOKE-Sensitivität ist somit positiv. Für  $d=20$  nm zeigt die Abnahme von  $\delta_k$ , dass tiefere Bereiche innerhalb der Probe mit vorderen destruktiv interferieren und sich aufheben. Diese Bereiche tragen mit umgekehrten Vorzeichen zu  $\delta_k$  bei und dominieren, dies ist durch den Vorzeichenwechsel erkennbar. Durch die Normierung trägt dadurch der Oberflächenbereich negativ zu  $\delta_k$  bei, die normierte Sensitivität ist folglich in diesem Bereich negativ.

Die Begründung für  $\theta$  und  $\varepsilon$  bis  $d = 20$  nm ist sehr ähnlich, beide Winkel sind für diesen Dickenbereich durchgehend positiv (siehe oben), d.h., es interferieren mehr Bereiche aus der Probe konstruktiv als destruktiv. Daraus folgt, dass die Sensitivität im Oberflächenbereich positiv ist. Weiterhin ist  $\tan(\xi) = \theta/\varepsilon > 1$  und steigt mit der Schichtdicke, siehe Abbildung 6.1.

Das bedeutet, dass Beiträge innerhalb der Probe von  $\theta$  nach  $\varepsilon$  verschoben werden und als Resultat fällt die Sensitivität von  $\theta$  schneller als die von  $\varepsilon$  mit zunehmender Probentiefe, siehe Kapitel 4.5. Die Kreuzung in  $\zeta$  entsteht durch die Normierung. Das Integral aus Formel (4.15) und (4.16) muss für den Real- und Imaginärteil eins sein, d.h., die Fläche unter der Kurve muss gleich sein. Da beide Sensitivitäten eine unterschiedliche MOKE-Sensitivität haben, müssen sich die beiden Kurven kreuzen.

## 6.2. Schichtdickenabhängige Dynamik

Zur Untersuchung der Spindynamik wurde die laserinduzierte Variation der Kerrrotation  $\theta$ , der Kerrelliptizität  $\varepsilon$  und des magnetischen Kontrastes  $\delta_k$  mit dem Pump-Probe-Schema gemessen, siehe Kapitel 5.1. Aufgrund der besseren Datenqualität werden zur Analyse der Dynamik hauptsächlich die Messungen der Kerrrotation und Kerrelliptizität verwendet. Für diese Messungen wurde eine eingestrahlte Pumpfluenz  $F = 6 \text{ mJ/cm}^2$  verwendet und die Pumppulse waren p-polarisiert. Die Proben wurden *in-situ* präpariert und an jeder Probe im Wechsel Kerrrotation und Kerrelliptizität gemessen, siehe Kapitel 5. Zur Bestimmung des Nullzeitpunktes der Verzögerungszeit zwischen Pump- und Probepulsen wurde die Autokorrelationsfunktion vor jeder Messung verwendet. Dies ermöglicht den direkten Vergleich der Messungen untereinander.

Die Messungen des magnetischen Kontrastes wurden in einer separaten Messreihe aufgenommen, bei der die Pumpfluenz ebenfalls  $F = 6 \text{ mJ/cm}^2$  betrug, aber die Pumppulse s-polarisiert waren, wodurch unterschiedliche Fluenzen absorbiert wurden. Die absorbierte Fluenz hängt von der Polarisation ab, siehe Abbildung 6.2. Die Minimierung des kohärenten Artefakts hatte dieses erforderlich gemacht, wodurch aber ein direkter Vergleich mit den Messungen der longitudinalen Geometrie nicht möglich ist, siehe Kapitel 5.1.1. Die Messungen werden daher zur Unterstützung der Interpretation verwendet.

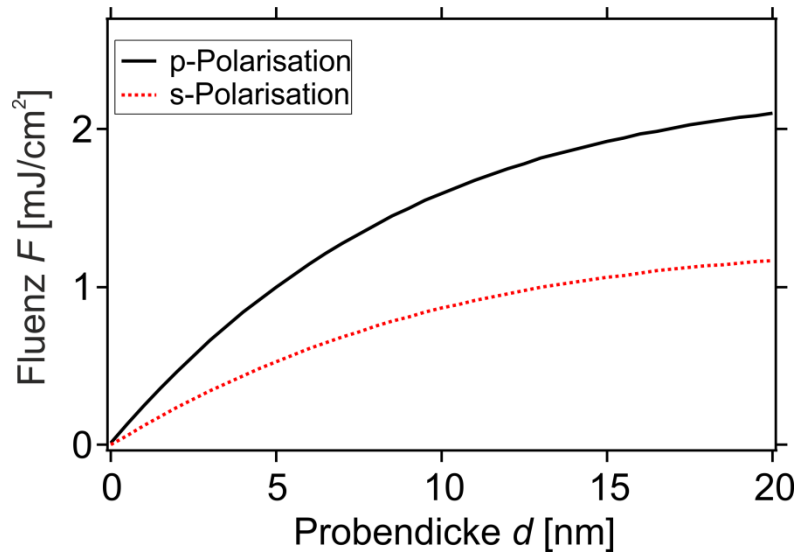


Abbildung 6.2: **Absorbierte Fluenz in Kobalt.** (a) Absorbierte Fluenz in Abhängigkeit der Schichtdicke und Polarisation berechnet mit dem Programm IMD [52]. Die Fluenz steigt mit der Kobaltschichtdicke. In dem Graph sind die Abhängigkeiten für p-polarisierte (schwarz, durchgezogene Kurve) und s-polarisierte (rot, gestrichelte Kurve) Strahlung dargestellt.

### 6.2.1. Longitudinale Geometrie

In Abbildung 6.3 sind die Ergebnisse der zeitaufgelösten Messungen in der longitudinalen Geometrie dargestellt. Im ersten Schritt werden die laserinduzierten Variationen der Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau) = \Delta\theta(\tau)/\theta_0$  und der Kerrelliptizität  $\Delta\varepsilon_n(\tau) = \Delta\varepsilon(\tau)/\varepsilon_0$  in einen Schichtdickenbereich von  $4 \text{ nm} < d < 20 \text{ nm}$  näher betrachtet. Für diesen Bereich zeigen die Ergebnisse ein systematisches Verhalten mit der Probendicke. Alle Kurven in Abbildung 6.3 zeigen starke Schwankungen für den zeitlichen Bereich um  $\tau = 0 \text{ ps}$ , wenn Pump- und Probepuls überlappen, die mit zunehmender Schichtdicke geringer werden. Diese Schwankungen werden durch einen nichtlinearen Effekt dritter Ordnung, das sogenannte „kohärente Artefakt“ [79], verursacht und spiegeln nicht die Magnetisierungsdynamik wieder, siehe Kapitel 5.1.1. Für dickere Schichtdicke konnte dieser Effekt aufgrund der größeren Signale besser heraus gemittelt werden und die Messungen haben eine bessere Qualität. Trotz

der Auswirkungen des kohärenten Artefaktes ist für alle Kurven eine Reduktion des Signals mit Eintreffen des Laserpulses und eine anschließende Regeneration zwischen 100 fs und 300 fs später zu erkennen. Beide Observablen  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  zeigen dabei eine interessante Schichtdickenabhängigkeit, welche im Folgenden diskutiert werden. Besonders bemerkenswert ist, dass die beide Observablen für alle Schichtdicken ein unterschiedliches transientes Verhalten zeigen.

Für  $d \geq 10$  nm wird ein schnelleres Einbrechen des Signals von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  als für  $\Delta\theta_n(\tau)$  und ein anschließendes Kreuzen beider Kurven zum Zeitpunkt  $t^*$  innerhalb von 200 fs beobachtet. Das Kreuzen beider Kurven zeigt keine klar erkennbare Systematik mit der Schichtdicke. Das Maximum von  $t^*$  liegt bei  $d = 15$  nm. Nach dem Kreuzen ist das relative Verhalten beider Kurven invertiert, die Variation von  $\Delta\theta_n(\tau)$  ist bis zum Ende der Messzeit von  $\tau = 25$  ps größer als die von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ . Mit zunehmender Zeitverzögerung nähern sich beide Kurven an und der Unterschied wird kleiner, siehe Abbildung 6.4

Für kleinere Schichtdicken  $d < 10$  nm kann das anfänglich stärkere Einbrechen von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  im Vergleich zu  $\Delta\theta_n(\tau)$  nicht beobachtet werden. Durch die begrenzte Datenqualität im Bereich des Nullzeitpunktes aufgrund des kohärenten Artefaktes können hierüber aber auch keine genaueren Aussagen gemacht werden. Der Effekt könnte im Rauschen verschwinden oder unterhalb der Zeitauflösung liegen. Innerhalb eines vertretbaren Zeitaufwandes konnten die Einflüsse des Kohärenten Artefaktes durch Mittelung auch nicht genügend weit beseitigt werden. Nach dem Auftreten des kohärenten Artefaktes zeigen die dünneren Proben mit  $d < 10$  nm das gleiche Verhalten wie die dickeren Proben mit  $d \geq 10$  nm für  $t > t^*$ . Die Variation von  $\Delta\theta_n(\tau)$  ist größer als die von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  und beide nähern sich für größere Zeiten einander an. Für  $d = 6$  nm kann ab  $\tau \approx 5$  ps und für  $d = 4$  nm ab  $\tau \approx 1$  ps kein Unterschied mehr aufgelöst werden, siehe Abbildung 6.4.

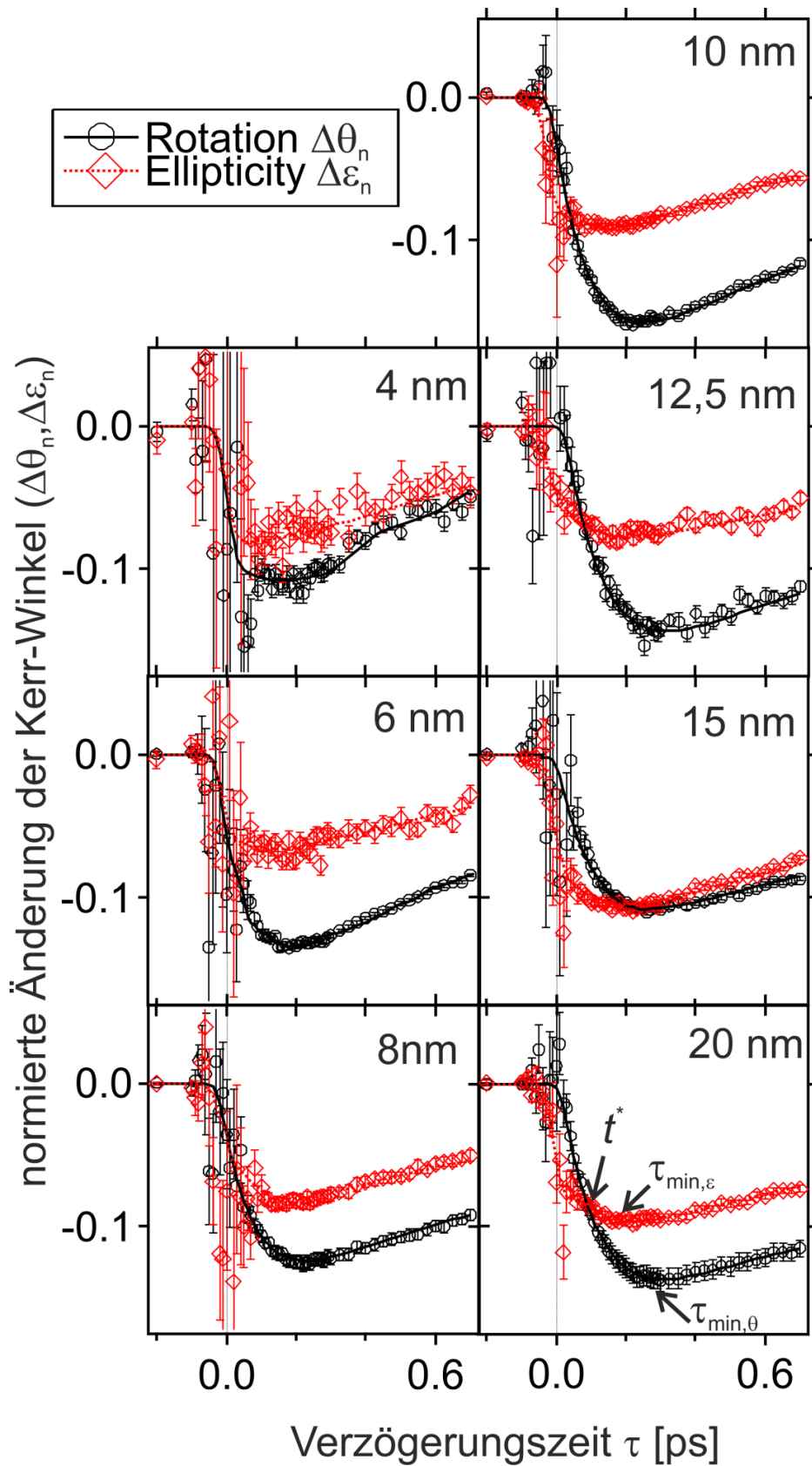


Abbildung 6.3: **Zeitaufgelöste Messungen in der longitudinalen Geometrie.** Schichtdickenabhängige Messungen der transienten Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze Kreise) und der Kerrelliptizität  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  (rote Rauten). Beide Winkel ( $\theta, \epsilon$ ) zeigen unterschiedliches Verhalten, wodurch eine Separation der dominierenden Mechanismen möglich wird. Durchgezogene Kurven sind zur besseren Darstellung eingezeichnet.

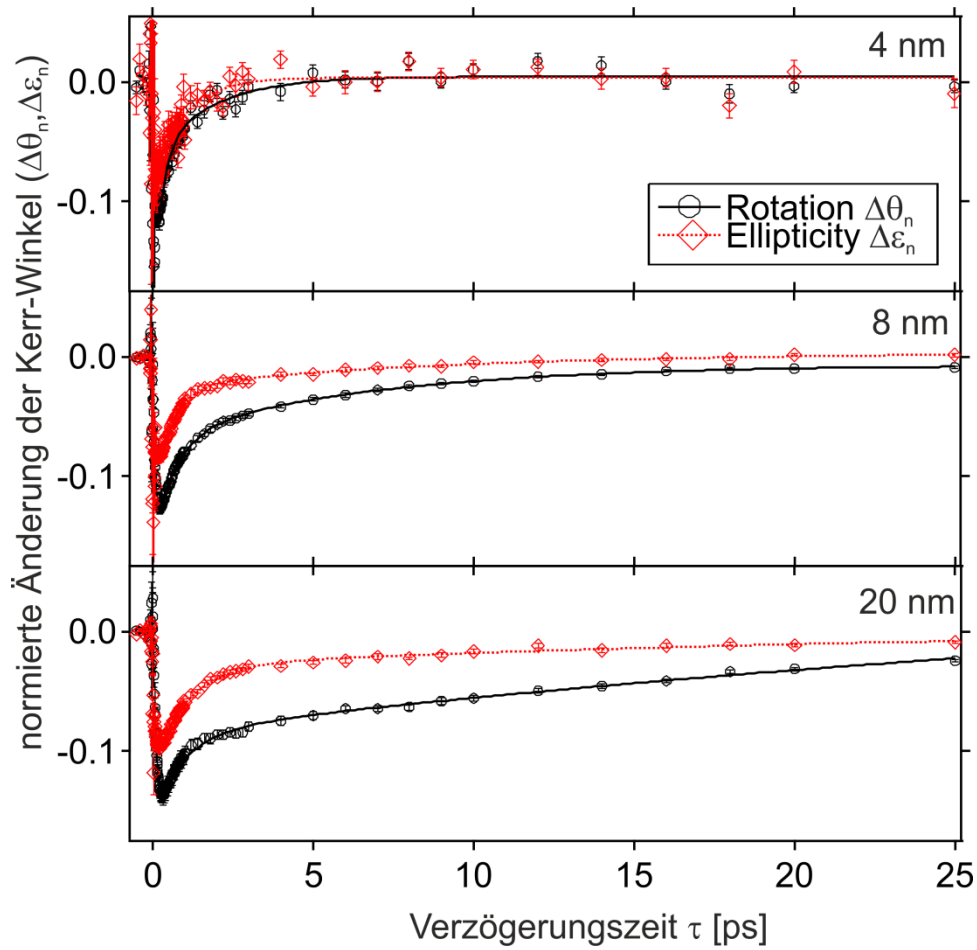


Abbildung 6.4: **Ergebnisse für lange Verzögerungszeiten  $\tau \geq 25$  ps.** Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze Kreise) und der Kerrelliptizität  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  (rote Rauten) für verschiedene Schichtdicken. Durchgezogene Kurven sind zur besseren Darstellung eingezeichnet. Für  $d \geq 8$  nm besteht das unterschiedliche transiente Verhalten von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  bis zum Ende des Messbereiches von  $\tau = 25$  ps.

Im Folgenden werden die Ergebnisse unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Tiefensensitivitäten von Kerrrotation  $\theta$  und Kerrelliptizität  $\epsilon$  analysiert und darüber Rückschlüsse über das Magnetisierungsprofil getroffen. Für das in dieser Arbeit untersuchte System Co/Cu(001) hat  $\theta$  eine höhere Sensitivität an der Oberfläche als  $\epsilon$ , siehe Kapitel 4.6. An der Grenzfläche zum Kupfersubstrat ist dies umgekehrt. Daraus folgt, dass die

Kerrrotation stärker auf eine Entmagnetisierung an der Oberfläche und schwächer auf eine Entmagnetisierung an der Grenzfläche reagiert als die Kerrelliptizität. Aufgrund der fundamental unterschiedlichen Magnetisierungsprofile für die zwei diskutierten Mechanismen in der Spindynamik, siehe Kapitel 3, ermöglicht dies eine qualitative Abschätzung der Profile. Für  $\Delta\theta_n(\tau) < \Delta\varepsilon_n(\tau)$  verhält sich das Magnetisierungsprofil wie für den thermisch getriebenen Spin-Flip und für  $\Delta\theta_n(\tau) > \Delta\varepsilon_n(\tau)$  wie für den spinpolarisierten Transport, siehe Abbildung 6.5.

Durch diese Überlegungen kann zeitlich separiert werden, welche Mechanismen zu welchen Zeitpunkten nach der laserinduzierten Anregung dominieren. Für Schichtdicken  $d \geq 10$  nm bricht mit Eintreffen des Laserpulses  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  schneller ein als  $\Delta\theta_n(\tau)$ , dies lässt darauf schließen, dass sich ein Magnetisierungsprofil mit einer stärkeren Entmagnetisierung an der Grenzfläche zum Kupfersubstrat bildet und somit Transporteffekte zuerst die Spindynamik im System dominieren. Für Schichtdicken  $d < 10$  nm kann hierüber keine klare Aussage gemacht werden. Aufgrund des kohärenten Artefakts könnten die Auswirkungen der Transporteffekte im Rauschen untergehen oder es könnte sich ein anderes Magnetisierungsprofil ausbilden. Für Schichtdicken in Bereich der mittleren freien Weglänge, einige Nanometer, siehe Tabelle 3.1, fallen die Unterschiede für Majoritäts- und Minoritätselektronen geringer aus, wodurch auch zu eine stärkere Entmagnetisierung an der Oberfläche im Vergleich zur Grenzfläche zum Kupfersubstrat entstehen kann, siehe Kapitel 3.2. Für Schichtdicken  $d \leq 4$  nm wird so ein Verhalten durch grenzflächensensitive SHG-Messungen (second harmonic generation) beobachtet, siehe Kapitel 7. Dadurch können die Unterschiede zwischen den beiden Kerrwinkeln ( $\Delta\theta_n(\tau), \Delta\varepsilon_n(\tau)$ ) verschwinden oder sich umkehren und die Variation von  $\Delta\theta_n(\tau)$  kann stärker ausfallen als die Variation von  $\Delta\varepsilon(\tau)$ .



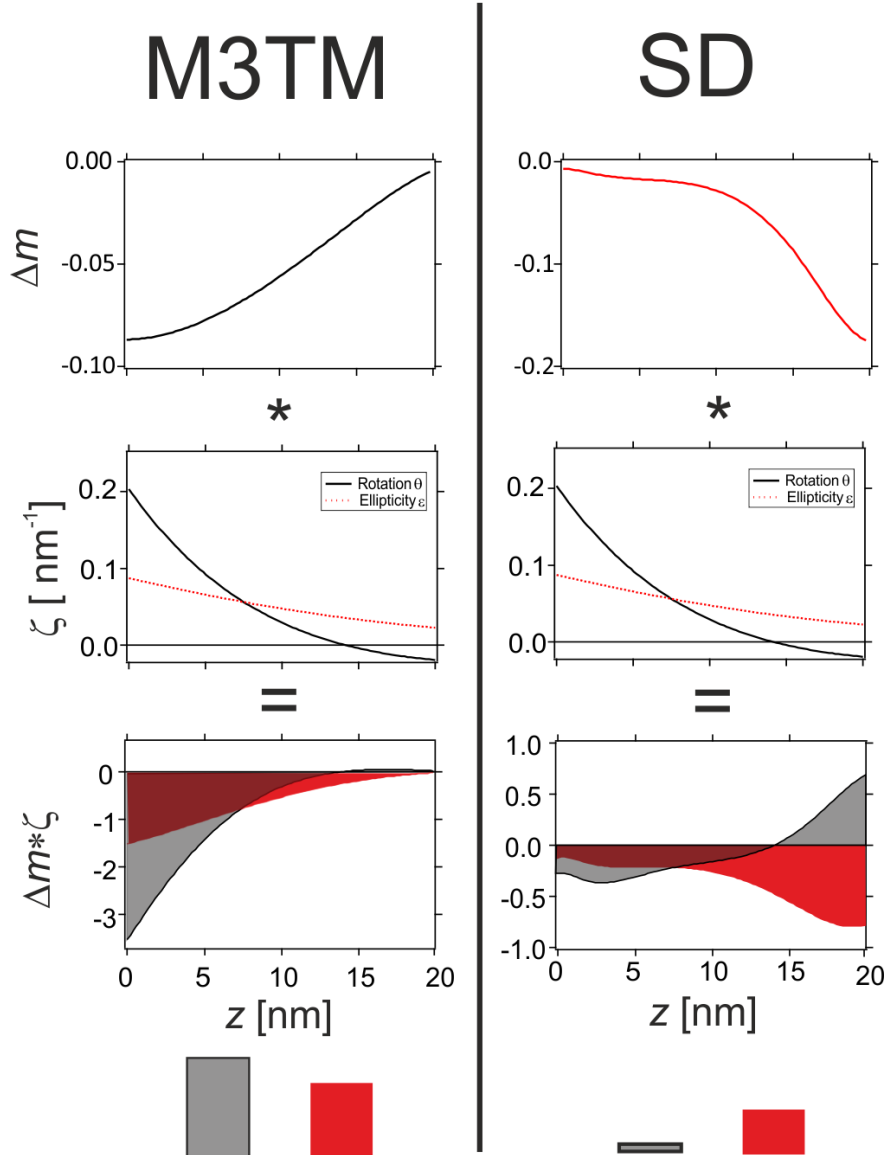


Abbildung 6.5: **Grundgedanke der Analyse.** Zur Analyse der Magnetisierungsprofile  $\Delta m(z, t)$  (oben) werden die unterschiedlichen Tiefensensitivitäten  $\zeta$  (mitte) von  $\theta$  und  $\varepsilon$  verwendet. Die Profile  $\Delta m$  wurden mit dem eM3TM für  $\tau = 170$  fs und den SDM nach Formel (3.9) für  $\tau = 20$  fs für  $d = 20$  nm berechnet. Nach Formel (4.15) ergibt sich die Variation beider Observablen ( $\Delta\theta_n(\tau), \Delta\varepsilon_n(\tau)$ ) aus der Integration (Fläche) von  $\zeta(z) \cdot \Delta m(z)$  (unten). Die relative Stärke der Variation zwischen  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze Fläche) und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  (rote Fläche) hängt vom Magnetisierungsprofil ab, wodurch eine Unterscheidung der Profile von lokalen (M3TM) und Transport (SD) Effekten möglich ist. Für verwendete Parameter siehe Tabelle 3.1.

Nach einigen zehn Femtosekunden stellt sich für alle Schichtdicken  $4 \text{ nm} \leq d \leq 20 \text{ nm}$  ein qualitativ ähnliches Magnetisierungsprofil ein wie für den thermisch getriebenen Spin-Flip, dies kann aus der stärkeren Variation von  $\Delta\theta_n(\tau)$  in Vergleich zu  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  geschlossen werden. Thermische Effekte dominieren die Spindynamik und verursachen eine verstärkte Entmagnetisierung an der Oberfläche.

Mit zunehmender Verzögerungszeit regeneriert die Magnetisierung und Inhomogenitäten innerhalb des Magnetisierungsprofiles nehmen ab. Dieses verursacht die Rückkehr des magnetooptischen Signals zum Gleichgewichtswert und ein Zusammenlaufen der Kurven  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon(\tau)$ . Mit zunehmender Schichtdicke ist der Energietransport ins Kupfersubstrat reduziert und die Regenerierung der Magnetisierung wird verlangsamt. Dieser Effekt wird weiter unten noch ausführlicher diskutiert.

Um weitere Einblicke in die laserinduzierte Magnetisierungsdynamik zu erhalten wird die zeitliche Entwicklung der Magnetisierungsprofile mit typischen Thermalisierungszeiten von  $3d$ -Metall verglichen, die im Bereich von (100-200) fs liegen [17]. Kobalt ist ein  $3d$ -Metall. In den ersten 100-200 fs zeigt das Magnetisierungsprofil ein typisches Profil, welches vom spinpolarisierten Transport erwartet wird und geht anschließend in ein Profil über, das von Spin-Flip-Ereignissen erwartet wird. Diese zeitliche Entwicklung der Magnetisierungsprofile legt nahe, dass in den verwendeten Proben Transporteffekte dominieren, während das elektronische System nicht im thermischen Gleichgewicht ist und dass mit der Thermalisierung Spin-Flip-Ereignisse anfangen zu überwiegen. Diese Schlussfolgerung ist übereinstimmend mit der Superdiffusiven-Spintransport-Theorie [6, 10] und dem mikroskopischen Drei Temperatur Modell [11], die derzeit kontrovers diskutiert werden. In der Superdiffusiven-Spintransport-Theorie findet die Magnetisierungsdynamik aufgrund eines Spinstroms statt, während das elektronische System nicht im thermischen Gleichgewicht ist. Dieser Spinstrom klingt mit der Thermalisierung des Elektronensystems ab und die Spinumverteilung stoppt [9]. Im M3TM tragen nur thermalisierte Elektronen zur Spin-Flip Streuung bei [11].

Um eine grobe Abschätzung der relativen Beiträge vom spinpolarisierten Transport und Spin-Flip-Ereignissen zur Entmagnetisierung zu bekommen, werden die Ergebnisse aus Abbildung 6.3 weiter analysiert, wobei sich die Abschätzung auf Schichtdicken  $d \geq 10 \text{ nm}$

beschränkt. Für dünnere Schichtdicken reicht die Datenqualität nicht aus, dieser Schichtdickenbereich wird in Kapitel 7 mit den Messungen der optischen zweiten Harmonischen weiter untersucht. Durch die Messungen des MOKE stehen nur zwei Observablen,  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ , zur Verfügung, wodurch es nicht möglich ist, ein detailliertes räumliches Magnetisierungsprofil zu berechnen. Um dennoch eine grobe Abschätzung zu erhalten, wird das Magnetisierungsprofil in zwei Bereiche mit homogener Magnetisierung eingeteilt, nämlich einen Bereich an der Oberfläche von  $[0, z_0]$  und einen Bereich an der Grenzfläche von  $[z_0, d]$ , wobei  $z_0$  die Tiefe ist, an der die Sensitivitäten der Kerrrotation  $\zeta_\theta$  und Kerrelliptizität  $\zeta_\varepsilon$  sich kreuzen, siehe Abbildung 4.5. Bei  $z_0$  ändert sich wie  $\theta$  und  $\varepsilon$  relativ zueinander auf eine Entmagnetisierung reagierten. Für  $d < z_0$  wird  $\theta$  stärker durch eine Entmagnetisierung modifiziert als  $\varepsilon$  und umgekehrt für  $d > z_0$ . Die Tiefe  $z_0$  liegt ungefähr in der Mitte der Probe. Zur Abschätzung wird die Differenz  $\Delta\Phi(\tau) = \Delta\theta_n(\tau) - \Delta\varepsilon_n(\tau)$  der Variation der Kerrrotation und Kerrelliptizität gebildet, welche ein Maß für das Magnetisierungsprofil ist. Für eine homogene Magnetisierung innerhalb der Schicht verschwindet  $\Delta\Phi(\tau)$ . Die Differenz  $\Delta\Phi$  kann mit Formel (4.15) zu

$$\Delta\Phi = \int_0^{z_0} \Delta\zeta \cdot \Delta m(z) dz + \int_{z_0}^d \Delta\zeta \cdot \Delta m(z) dz = \Delta\theta_n - \Delta\varepsilon_n \quad (6.1)$$

umgeschrieben werden, wobei  $\Delta\zeta = \zeta_\theta - \zeta_\varepsilon$  die Differenz der MOKE-Sensitivitäten und  $d$  die Probendicke ist. Für die untersuchten Proben ist der erste Term negativ und der zweite positiv für eine Entmagnetisierung ( $\Delta m < 0$ ) der Schicht. Für die Abschätzung wird angenommen, dass Transporteffekte nur eine Entmagnetisierung in einem Bereich von  $[Z_0, d]$  (Kupfergrenzfläche,  $\Delta\Phi > 0$ ) und Spin-Flip-Ereignisse in einem Bereich von  $[0, Z_0]$  (Oberfläche,  $\Delta\Phi < 0$ ) verursachen. Die jeweiligen Effekte werden dabei unterschätzt, da diese über die ganze Probe hinweg zur Entmagnetisierung beitragen. Für Probendicken  $d \geq 10$  nm ist der Betrag von  $\Delta\Phi$  für beide Mechanismen ungefähr gleich groß und in derselben Größenordnung wie die gesamte Entmagnetisierung ( $\Delta\theta_n, \Delta\varepsilon_n$ ). Daraus folgt, dass

beide Effekte ungefähr in der derselben Größenordnung zur Entmagnetisierung beitragen. Diese Abschätzungen werden durch die Simulationen in Kapitel 6.3 weiter unterstützt.

Eine weitere Besonderheit, die in den Messungen auffällt, siehe Abbildung 6.3, ist die schichtdickenabhängige Position der minimalen magnetooptischen Antwort. Das Minimum verschiebt sich zu späteren Verzögerungszeiten und die Proben entmagnetisieren tendenziell stärker mit wachsender Schichtdicke. Dieses Verhalten wird daher genauer analysiert. Zur Analyse wurden die Kurven mit der Funktion

$$F(\tau) = f(t) * G(t), \quad (6.2)$$

mit

$$f(t) = A_M \cdot \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_M}}\right) + A_{R_1} \cdot \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_{R_1}}}\right) + A_{R_2} \cdot \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_{R_2}}}\right) \quad (6.3)$$

gefitet, wobei  $A_i$  Amplituden und  $\tau_i$  Zeitkonstanten mit  $i = (M, R_1, R_2)$  sind. Die Indizes beziehen sich auf die Entmagnetisierung (M) und die Regenerierung ( $R_1, R_2$ ). Um die Zeitauflösung des Pump-Probe-Experiments zu berücksichtigen, wurde die Funktion  $f(t)$  mit einer Gaußfunktion  $G(t)$  mit einer Halbwertsbreite von 35 fs gefaltet. Zeitliche Bereiche bis ca.  $\tau = 80 - 100$  fs sind problematisch für diese Fitfunktion, diese Bereiche werden nur sehr schlecht von der Fitfunktion erfasst. Weiterhin erschwert das kohärente Artefakt die Analyse in diesem Zeitbereich. Für Verzögerungszeiten  $\tau > 80 - 100$  fs gibt die Funktion jedoch das transiente Verhalten der Kerrwinkel sehr gut wieder und eignet sich deshalb zur Bestimmung der Minimumposition. Bei der Analyse wurden die ersten  $\tau = 80 - 100$  fs nicht in den Fit

mit einbezogen. Es wurde keine passende Fitfunktion gefunden, die alle Zeiten zufriedenstellend abdeckt.

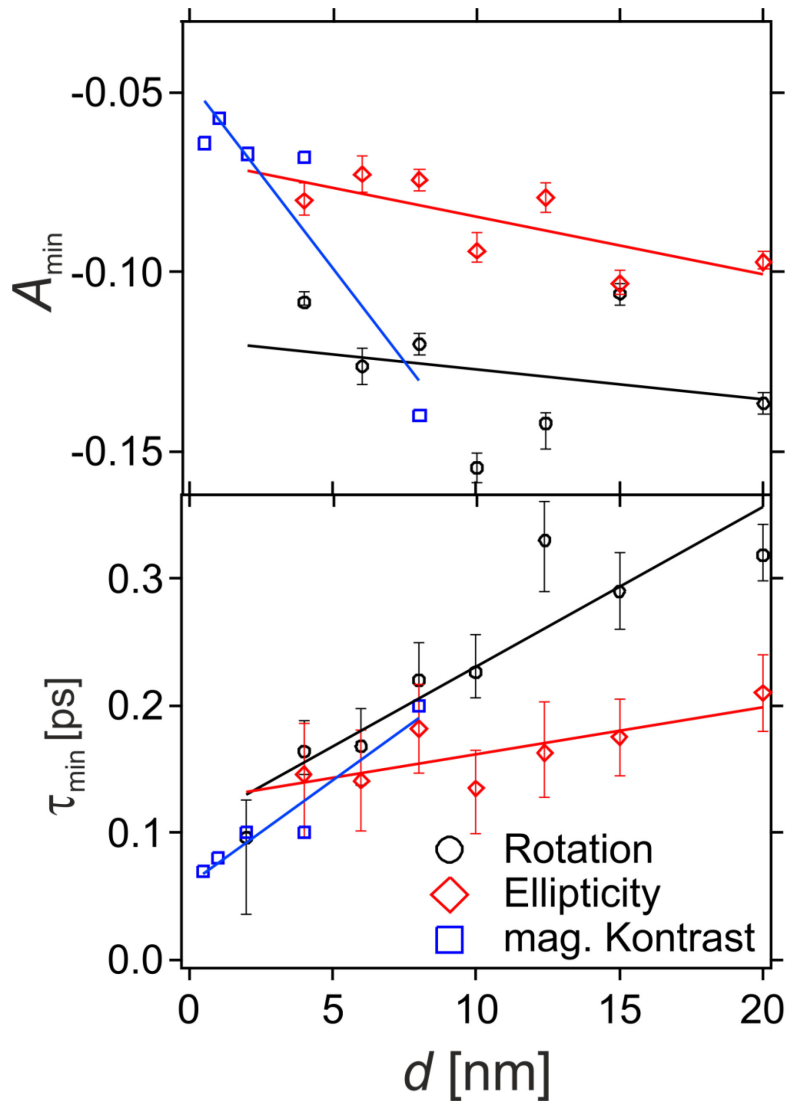


Abbildung 6.6: **Minimumposition (Experiment)**. Schichtdickenabhängige Position der minimalen magneto-optischen Antwort von  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze Kreise),  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  (rote Rauten) und  $\Delta\delta_k(\tau)$  (blaue Quadrate). (Oben)  $A_{\min}$ : Stärke der Entmagnetisierung, (unten)  $\tau_{\min}$  Zeitverzögerung des Minimums. Mit zunehmender Schichtdicke entmagnetisieren die Proben stärker und für längere Zeit. Die Minimumposition unterscheidet sich für die drei Observablen. Linien sind für die bessere Darstellung eingezeichnet.

Das schichtdickenabhängige Verhalten der Minimumposition ist in Abbildung 6.6 dargestellt. Tendenziell nimmt die maximale Variation beider Observablen ( $A_{\min,\theta}, A_{\min,\varepsilon}$ ) zu und die zeitliche Position des Minimums verschiebt sich zu späteren Verzögerungszeiten mit der Schichtdicke. Besonders bemerkenswert dabei ist, dass die zeitliche Verschiebung  $\tau_{\min,\theta}$  der Rotation stärker ausgeprägt ist als die zeitliche Verschiebung  $\tau_{\min,\varepsilon}$  der Kerrelliptizität. Für alle Schichtdicken braucht die Rotation länger um mit der Regeneration zu beginnen als die Elliptizität  $\tau_{\min,\theta} > \tau_{\min,\varepsilon}$ . Dies bedeutet, dass oberflächennahe Bereiche länger entmagnetisieren als Bereiche nahe der Grenzfläche zum Kupfersubstrat. Dieser Effekt ist plausibel durch die Konkurrenz von Transport- und Spin-Flip-Effekten erklärbar. Die Änderung der Magnetisierung, die durch Spin-Flip-Ereignisse verursacht wird, hängt von der lokalen Elektronentemperatur ab, d.h. die Magnetisierung strebt einen Wert an, der von dieser Temperatur bestimmt wird. Bereiche nahe der Grenzfläche zum Substrat erreichen diesen Wert früher, da Transporteffekte in diesen Bereichen schon zur einer Entmagnetisierung geführt haben und fangen daher auch früher an zu regenerieren. Aufgrund der höheren Sensitivität von  $\varepsilon$  im Vergleich zu  $\theta$  an der Grenzfläche fängt  $\varepsilon$  darauf hin auch früher an zu regenerieren. Diese Interpretation wird durch die Simulation der Spindynamik bekräftigt, siehe Kapitel 6.3. Eine Aufspaltung von  $\tau_{\min}$  für  $\Delta\varepsilon_n$  und  $\Delta\theta_n$  ist nur durch eine Kombination beider Mechanismen möglich, siehe Kapitel 6.3 und Abbildung 6.17.

Im nächsten Schritt wird die Verschiebung zu höheren Verzögerungszeiten mit steigender Schichtdicke der Minimumposition, sowohl für  $\theta$  als auch für  $\varepsilon$ , genauer betrachtet, siehe Abbildung 6.6. Dieses Verhalten kann nicht mit einer höheren absorbierten Fluenz zusammenhängen, wie in anderen Veröffentlichungen berichtet [11]. Zwar steigt die absorbierte Energie, aber die absorbierte Energiedichte pro Volumen fällt dagegen mit wachsender Schichtdicke, siehe Abbildung 6.7. Somit muss ein anderer Mechanismus dominieren, wobei nur die eingeschränkte Wärme-/Energieleitung der Kobaltschicht im Vergleich zum Kupersubstrat übrig bleibt. Die Wärmeleitung von Kupfer ist vier Mal höher als von Kobalt [53], womit Kupfer als Energie-/Wärmesenke dient, da die Energie schnell ins Substrat abtransportiert werden kann. Mit wachsender Schichtdicke braucht die Energie länger um ins Substrat abzufließen und die Kobaltschicht bleibt länger heiß. Die Schicht kann länger und stärker entmagnetisieren, siehe Abbildung 6.6.

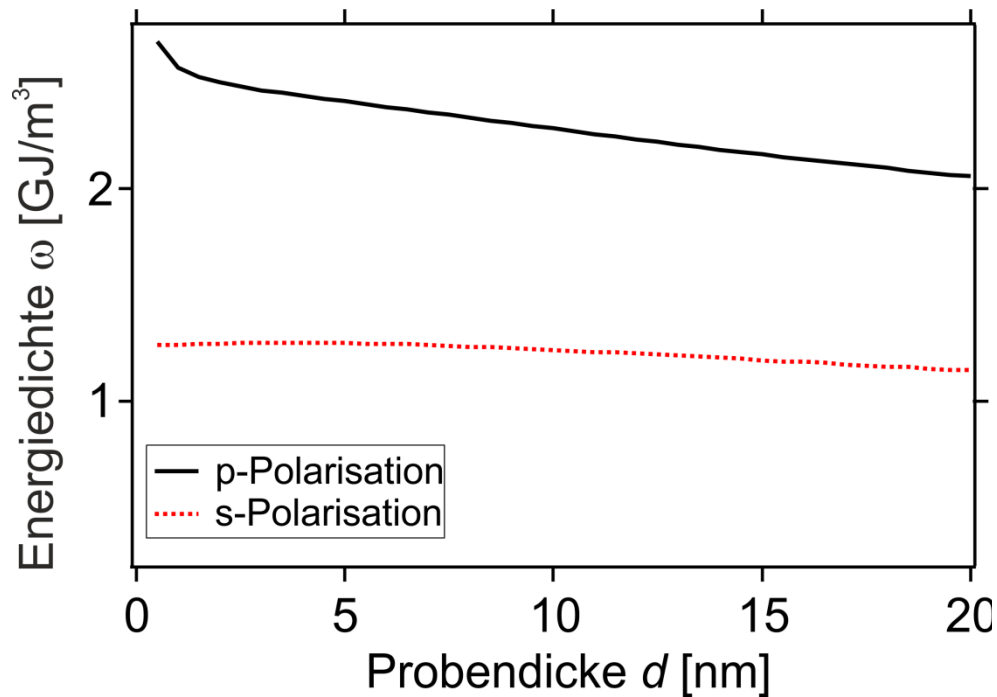


Abbildung 6.7 **Absorbierte Energiedichte an der Oberfläche.** Absorbierte Energiedichte an der Oberfläche berechnet mit Formel (3.4) und einer Skintiefe von  $\delta_{\text{skin}} = 13$  nm. In den Graphen sind die Abhängigkeiten für p-polarisierte (schwarz, durchgezogene Kurve) und s-polarisierte (rot, gestrichelte Kurve) Strahlung dargestellt.

## 6.2.2. Transversale Geometrie

Im Folgenden werden die MOKE-Messungen in der transversalen Geometrie (Abbildung 4.1) betrachtet. Aufgrund der unterschiedlichen absorbierten Fluenzen zwischen den Messungen in der longitudinalen und transversalen Geometrie ist aber ein direkter Vergleich zwischen den Messungen schwierig, siehe Abbildung 6.2.

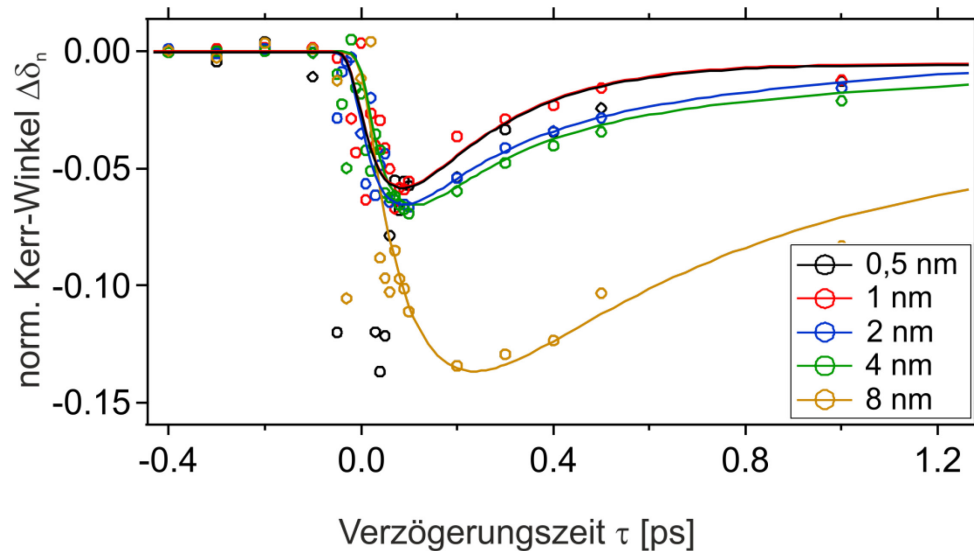


Abbildung 6.8: **Zeitaufgelöste Messungen in der transversalen Geometrie.** Laserinduzierte Variation des magnetischen Kontrastes  $\delta_k$  für Schichtdicken von  $0,5 \text{ nm} \leq d \leq 8 \text{ nm}$ . Durchgezogene Kurven sind zur besseren Darstellung eingezeichnet.

Abbildung 6.8 zeigt die laserinduzierten Variationen des magnetischen Kontrastes  $\Delta\delta_{k,n}(\tau) = \Delta\delta_k(t)/\delta_{k,0}$  für Kobaltschichten mit einer Dicke von  $d = 0,5 - 8 \text{ nm}$ . Die Kurven zeigen dasselbe qualitative schichtdickenabhängige Verhalten wie in der longitudinalen Geometrie. Das Signal bricht mit Eintreffen des Laserpulses ein und fängt nach ca. 100-200 fs an zu regenerieren. Im zeitlichen Bereich um  $\tau = 0 \text{ ps}$  zeigen die Messdaten wieder eine verstärkte Streuung, welche durch das kohärente Artefakt entstehen [79]. Wie in der longitudinal Geometrie wird das schichtdickenabhängige Verhalten der Position der minimalen magneto-optischen Antwort analysiert, siehe Abbildung 6.6. Die Werte zeigen dieselben Tendenzen wie in der longitudinalen Geometrie, jedoch ist ein direkter Vergleich aufgrund der unterschiedlichen Fluenz nicht möglich. Das Minimum verschiebt sich zu späteren Verzögerungszeiten und stärkeren Entmagnetisierungen mit wachsender Schichtdicke. Es wird davon ausgegangen, dass dieselben Mechanismen wie in der longitudinalen Geometrie für diesen Effekt verantwortlich sind, siehe Kapitel 6.2.1. Durch die größere Schichtdicke ist der Wärmetransport eingeschränkt, die Energie fließt langsamer in das Kupfersubstrat ab und die Schicht bleibt länger heiß. Daraus folgt, dass die Schicht länger



und stärker Entmagnetisieren kann. Anders als in der longitudinalen Geometrie wurden die Minimumpositionen nicht über einen Fit bestimmt, sondern der Wert wird aus den Datenpunkten abgelesen. Die Datenmenge und Datenqualität war hierfür zu gering.

In der transversalen Geometrie tritt ein sehr interessanter Effekt für die  $d = 20$  nm dicke Probe auf. Das transiente Verhalten des magnetischen Kontrastes weicht fundamental von dem übrigen Verhalten für geringere Schichtdicken ab, siehe Abbildung 6.9. Mit Eintreffen des Laserpulses bricht  $\Delta\delta_{k,n}(\tau)$  bis  $\tau \approx 30$  fs ein und wächst anschließend bis  $\tau \approx 400$  fs über den Gleichgewichtswert an. Anschließend fällt das Signal wieder langsam ab. Dieses Verhalten kann sehr gut mit dem oben entwickelten Bild und der speziellen MOKE-Sensitivität dieser Probe erklärt werden. Die Sensitivität ist im oberflächennahen Bereich negativ und an der Grenzfläche zum Substrat positiv, siehe Abbildung 4.5. Die unterschiedlichen Vorzeichen in der Sensitivität entstehen bei der Propagation des Lichtes in der Kobaltschicht. Bei der Propagation des Lichtes in der Materie verschiebt sich die Phase des Lichtes und tiefere Bereiche innerhalb der Probe tragen mit einem unterschiedlichen Vorzeichen bei, siehe Kapitel 4.4 und 6.1. Das resultierende magnetooptische Signal für diese Sensitivität setzt sich aus den Signalen beider Bereiche zusammen. Entmagnetisierung im vorderen Bereich der Probe verursacht einen Anstieg und im hinteren Bereich der Probe einen Abfall von  $\delta_k$ . Durch Transporteffekte wird anfänglich der grenzflächennahe Bereich verstärkt entmagnetisiert, wodurch ein Einbruch von  $\delta_k$  entsteht. Anschließend gewinnen Spin-Flip-Ereignisse Oberhand und führen zu einer verstärkten Entmagnetisierung an der Oberfläche im Vergleich zum grenzflächennahen Bereich. Der Anstieg von  $\delta_k$  vom vorderen Bereich der Probe kann nicht durch den Abfall von  $\delta_k$  vom hinteren Bereich kompensiert werden, wodurch in der Summe einen Anstieg von  $\delta_k$  entsteht.

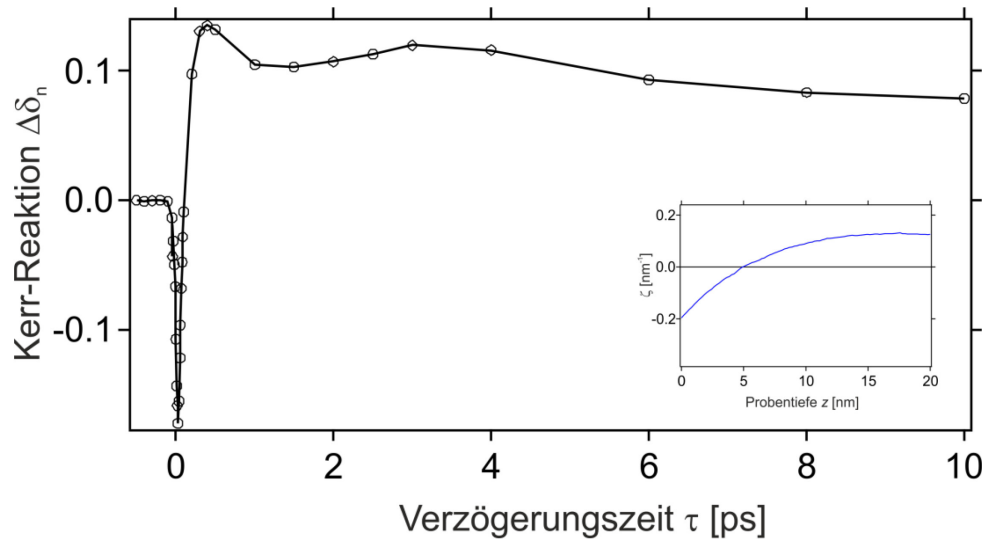


Abbildung 6.9: **Variation von  $\Delta\delta_{k,n}$  für  $d = 20$  nm.** Nach der Laseranregung fällt der magnetische Kontrast kurzweilig und steigt anschließend über seinen Gleichgewichtswert an, dies entsteht aus der speziellen MOKE-Sensitivität (Nebenbild) und der Konkurrenz von thermisch getriebenen Spin-Flip und Transporteffekten.

### 6.3. Modellierung

Zur Unterstützung der Experimente wird die zeitliche und räumliche Änderung der Magnetisierung innerhalb der Kobaltschichten simuliert und die magnetooptische Antwort des Systems ausgerechnet. Zur Simulation wird eine Erweiterung des mikroskopischen Drei Temperatur Modells (eM3TM) und das spinpolarisierte Diffusionsmodell (SDM) verwendet, welche im Kapitel 3 vorgestellt wurden. Anschließend werden diese beiden Modelle kombiniert, um ein besseres Verständnis über die Konkurrenz von Transfer- und Transporteffekten zu bekommen.

### 6.3.1. Longitudinale Geometrie

Im ersten Schritt wird die Magnetisierungsdynamik mit dem eM3TM berechnet und die magnetooptische Antwort des Systems in der longitudinalen Geometrie berechnet und diskutiert. Mit der experimentellen verwendeten Fluenz als Eingabe in den Simulationen wurde eine bis zu 5 mal höhere Entmagnetisierung der Kobaltschicht erzielt, als in den Experimenten beobachtet, weswegen diese auf die Hälfte ( $F = 3 \text{ mJ/cm}^2$ ) reduziert wurde. In Abbildung 6.2 sind die absorbierten Fluenzen für eine eingestrahlte Fluenz von  $F = 6 \text{ mJ/cm}^2$ , abhängig für die Schichtdicke, dargestellt. In den Simulationen wurde die Hälfte der entsprechenden Werte verwendet. Die Parameter der Simulation sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

Zur Simulation wurden zuerst die transienten Temperaturprofile für das elektronische und phononische System mit dem Zwei-Temperatur-Modell (2TM) für die experimentellen untersuchten Schichtdicken berechnet. In Abbildung 6.10 ist die Oberflächentemperatur des elektronischen und phononischen Systems dargestellt. Die Elektronentemperatur steigt während des Laserpulses und fällt anschließend wieder, wobei sich der Temperaturverlauf für die einzelnen Schichtdicken voneinander unterscheidet. Es ist zu erkennen, dass die Temperatur des elektronischen Systems direkt nach dem Eintreffen des Laserpulses innerhalb der Pulsdauer steigt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im 2TM die Thermalisierungszeit des elektronischen Systems vernachlässigt wird. Die zeitliche Entwicklung der Temperatur ist durch die Konkurrenz von Energiegewinn durch Absorption des Laserpulses, Energieverlust durch Kopplung ans phononische System und Umverteilung durch Wärmediffusion bestimmt. Dabei hat die Wärmediffusion einen entscheidenden Einfluss auf die Temperatur des elektronischen Systems, dies ist anhand des unterschiedlichen Abklingverhaltens der Temperatur für unterschiedliche Schichtdicken erkennbar. Mit zunehmender Schichtdicke klingt die Temperatur immer langsamer ab, der Grund hierfür ist die geringere Wärmeleitung von Kobalt im Vergleich zu Kupfer. Die Wärmeleitung von Kupfer ist 4 mal so hoch wie von Kobalt [53] und stellt somit eine Wärmesenke im System dar. Mit größerer Schichtdicke

braucht die Energie länger, um durch die Kobaltschicht zu diffundieren und das elektronische System wird heißer und die Abklingzeit der Temperatur wird größer. Dies spiegelt sich auch in der Temperatur des phononischen Systems wieder. Aufgrund der heißeren Temperatur und reduzierten Abklingzeit des elektronischen Systems kann mehr Energie transferiert werden und die Phononentemperatur steigt stärker mit der Schichtdicke an, siehe Abbildung 6.10.

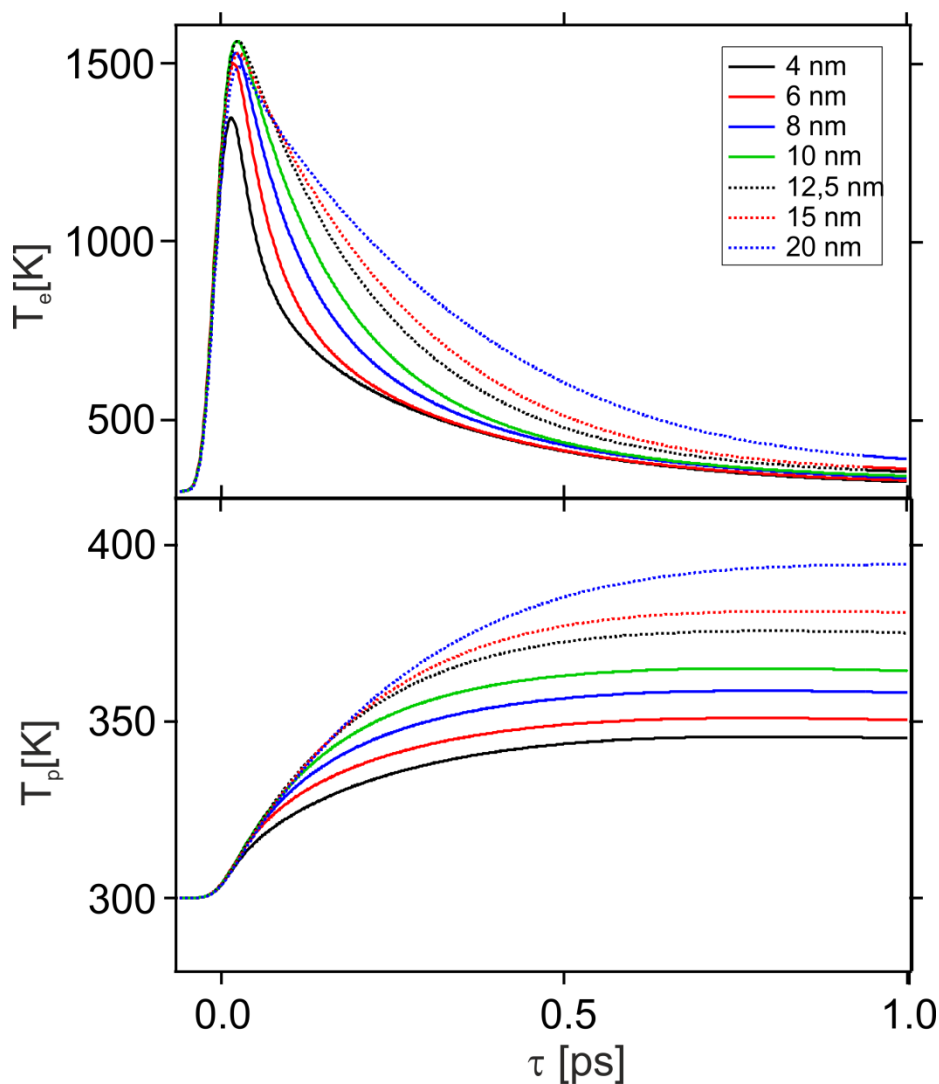


Abbildung 6.10: **Oberflächentemperatur nach dem 2TM.** Temperaturverlauf nach der Laseranregung für das elektronische (oben) und das phononische (unten) System für verschiedene Schichtdicken. Die Abklingzeit der Temperatur des elektronischen Systems reduziert sich mit der Schichtdicke, wodurch mehr Energie in das phononische System transferiert werden kann.

Mit den Temperaturprofilen aus den 2TM und Formel (3.6) können anschließend die transienten Magnetisierungsprofile nach dem eM3TM berechnet werden. In Abbildung 6.11 sind Magnetisierungsprofile und Temperaturprofile für unterschiedliche Schichtdicken für  $\tau = 200$  fs dargestellt. Aufgrund der höheren Oberflächentemperatur entmagnetisieren Bereiche an der Oberfläche stärker als Grenzflächenbereiche zum Substrat. Weiterhin entmagnetisieren dickere Schichten stärker als dünnere auf Grund der erhöhten Temperatur und Abklingzeit.

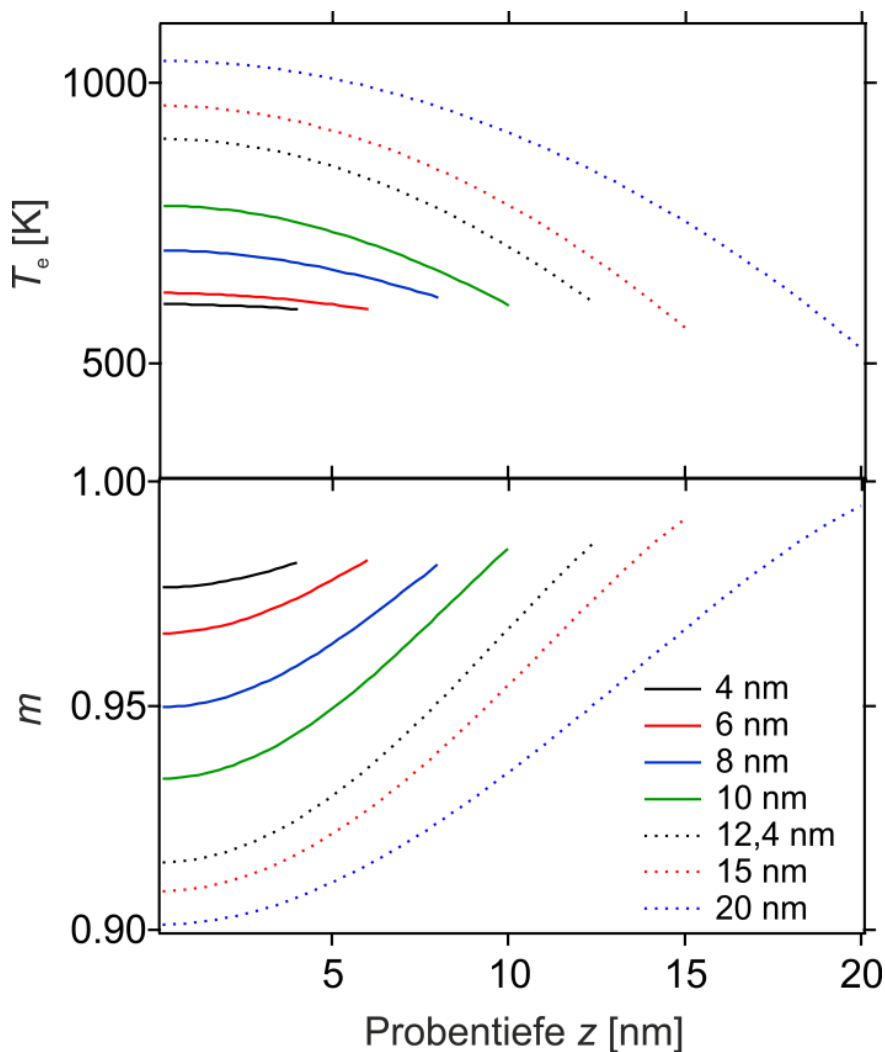


Abbildung 6.11: **Profile nach den eM3TM.** Temperatur- (oben) des elektronischen Systems und Magnetisierungsprofile (unten) für verschiedene Schichtdicken für  $\tau = 200$  fs. Die Energie fließt in das Kupfersubstrat ab und es entsteht ein negativer Gradient der Temperatur und ein positiver für die Magnetisierung in die Kobaltschicht hinein.

Um die Auswirkungen der Magnetisierungsprofile auf die magnetooptischen Signale zu untersuchen wird die Variation der Kerrrotation und Kerrelliptizität mit den Sensitivitäten aus Abbildung 4.5 und Formel (4.15) berechnet. In Abbildung 6.12 ist der transiente Verlauf für  $d = 20\text{nm}$  dargestellt. Bemerkenswert ist das unterschiedliche zeitliche Verhalten von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ , welches alleine durch die Profile und die Tiefensensitivität zustande kommt. In der Simulation sind die optischen Parameter konstant gehalten. Nach dem eM3TM ist die Variation von  $\Delta\theta_n(\tau)$  für alle Verzögerungszeiten stärker als die von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ . Der experimentell anfänglich stärkere Einbruch von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ , siehe Abbildung 6.3, hingegen kann für keine Schichtdicke beobachtet werden, dieser Einbruch wurde einem Beitrag von spinpolarisiertem Transport zugeordnet, welcher im eM3TM nicht berücksichtigt wird.

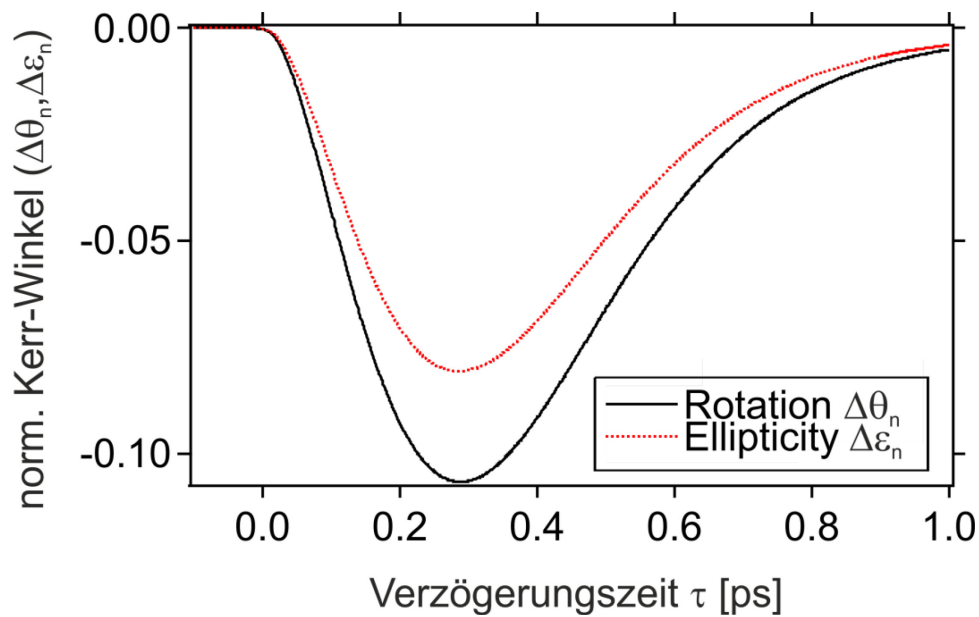


Abbildung 6.12: **Variation der Kerrwinkel für  $d = 20\text{ nm}$  nach dem eM3TM.** Variation der Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze durchgezogene Kurve) und der Kerrelliptizität  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  (rote gestrichelte Kurve). Beide Kurven zeigen unterschiedliches transientes Verhalten, welche alleine durch die Magnetisierungsprofile und die MOKE-Sensitivitäten entstehen.

Aus dem berechneten zeitlichen Verhalten wird die Zeitverzögerung und der Wert des Minimums von  $\Delta\theta_n$  und  $\Delta\varepsilon_n$  bestimmt und gegen die Schichtdicke dargestellt, siehe Abbildung 6.13. Die simulierten Kurven zeigen ein ähnliches Verschieben der Minimumposition zu späteren Zeiten mit wachsender Schichtdicke wie die Experimentellen, jedoch nicht das unterschiedliche Verhalten für  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ . Die maximale Variation des magnetooptischen Signales wird ebenfalls in den Simulationen stärker als in den Experimenten, siehe Abbildung 6.13.

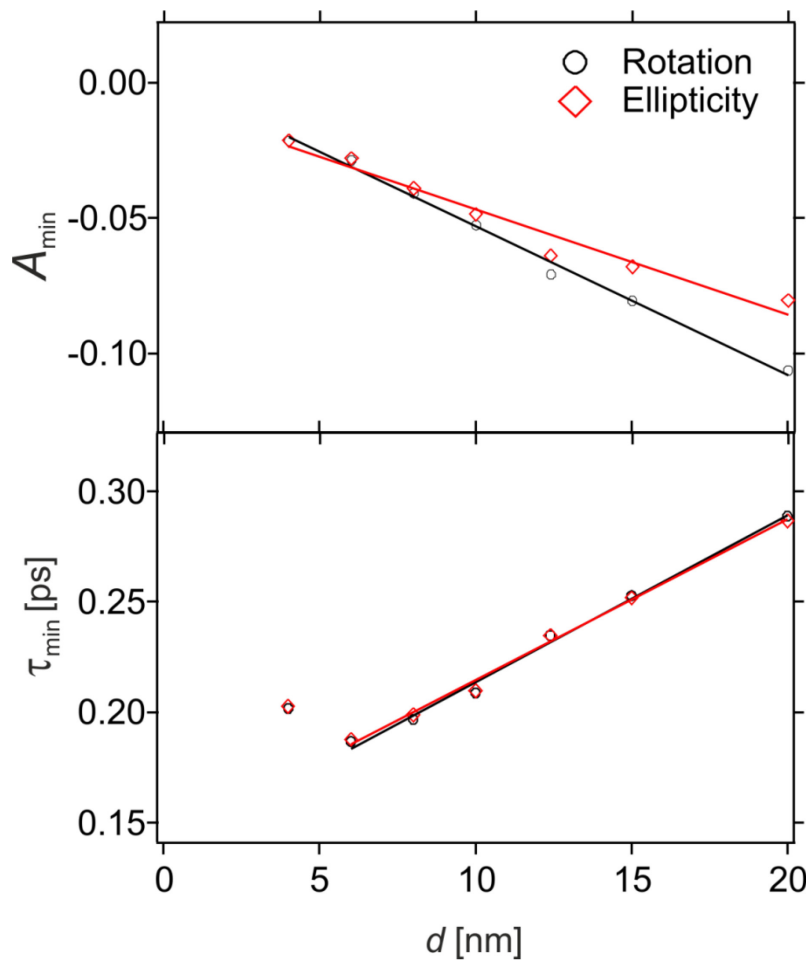


Abbildung 6.13: **Minimumposition (eM3TM)**. Schichtdickenabhängige Position der minimalen magneto-optischen Antwort von  $\Delta\theta_n$  (schwarze Kreise) und  $\Delta\varepsilon_n$  (rote Rauten). (Oben)  $A_{\min}$ : Stärke der Entmagnetisierung, (unten)  $\tau_{\min}$  Zeitverzögerung des Minimums. Mit zunehmender Schichtdicke entmagnetisieren die Proben stärker und länger.

Das eM3TM kann die stärkere Reduktion von  $\Delta\theta_n(\tau)$  im Vergleich zu  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  (Abbildung 6.3), die sich in den Experimenten innerhalb von  $\tau = 200$  fs für alle Schichtdicken einstellt, und das schichtdickenabhängige Verschieben von  $\tau_{\min}$  (Abbildung 6.6) reproduzieren. Diese Beobachtungen wurden einem Beitrag von Spin-Flip-Streuung in den Experimenten zugeordnet. Jedoch kann mit dem eM3TM nicht die stärkere Reduktion von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  im Vergleich zu  $\Delta\theta_n(\tau)$  und das unterschiedliche Verhalten in Abhängigkeit der Schichtdicke von  $\tau_{\min}$  für  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  reproduziert werden. Diese Beobachtungen wurden in den Experimenten einem Beitrag von spinpolarisiertem Transport in der Magnetisierungsdynamik zugeordnet. Zur Simulation dieser Beiträge wurde im Rahmen dieser Arbeit ein spinpolarisiertes Diffusionsmodell (SDM) entwickelt und in die Simulation implementiert. Eine ausführliche Beschreibung befindet sich in Kapitel 3. Die Gleichungen (3.9) des SDM bestehen aus zwei unabhängigen Diffusionsgleichungen, mit einem Quell- und einem Zerfallsterm, für angeregte Majoritäts- und Minoritätselektronen, womit die Umverteilung der Elektronen und damit der Magnetisierung berechnet werden kann. In der Gleichung wurde das Kupfersubstrat als Elektronensenke berücksichtigt, wodurch ein verstärkter Elektronentransport an der Grenzfläche zum Kupfersubstrat entsteht. Die Beschreibung der Magnetisierungsdynamik mit dem SDM führt zu einer verstärkten Entmagnetisierung an der Grenzfläche zum Substrat im Vergleich zu oberflächennahen Bereichen, siehe Abbildung 3.3.

In Abbildung 6.14 ist die zeitlich veränderte magnetooptische Antwort des Systems für  $d = 20$  nm dargestellt. Zur Berechnung wurde die Magnetisierung mit dem SDM bestimmt und die Variation des komplexen Kerrwinkels mit Formel (4.15) berechnet. Diese Modellbeschreibung führt zu dem stärkeren Einbruch von  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  im Vergleich zu  $\Delta\theta_n(\tau)$ , welche in den Experimenten beobachtet wurden.



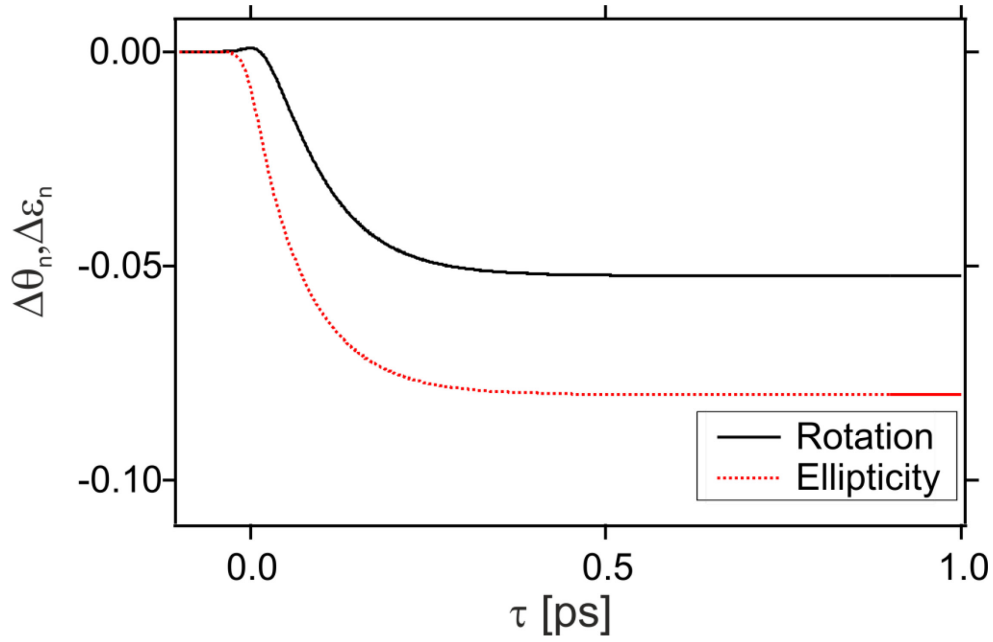


Abbildung 6.14: **Variation der Kerrwinkel für  $d = 20$  nm nach dem SDM.** Variation der Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze durchgezogene Kurve) und der Kerrelliptizität  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  (rote gestrichelte Kurve). Nach der Laseranregung bricht  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  stärker ein als  $\Delta\theta_n(\tau)$ .

Es wird erwartet, dass Transportbeiträge in der Magnetisierungsdynamik durch einen Spinstrom von Elektronen im nichtthermischen Gleichgewicht verursacht werden und der Spinstrom nach der Thermalisierung des elektronischen Systems abklingt [9]. Daher wurde im SDM ein Zerfallsterm für die angeregten Elektronen implementiert, siehe Kapitel 3.2.1, wodurch sich die Magnetisierung nach der Thermalisierung zeitlich nicht weiter verändert und eine schichtdickenabhängige Untersuchung von  $\tau_{\min}$  und  $A_{\min}$  nicht möglich ist.

Zur Simulation der Konkurrenz von beiden Beiträgen, lokale (eM3TM) und nichtlokale (SDM) und um ein vollständiges Bild der Magnetisierungsdynamik zu erhalten, werden die Beiträge zur Magnetisierungsdynamik addiert

$$\frac{dm}{dt} = \frac{\partial m_{\text{eM3TM}}}{\partial t} + \frac{\partial m_{\text{SD}}}{\partial t}, \quad (6.4)$$

wobei  $\partial m_{\text{eM3TM}}/\partial t$  und  $\partial m_{\text{SD}}/\partial t$  mit den Formeln (3.6) und (3.11) berechnet werden. Dabei werden in der Simulation die Normierungskonstanten  $c_\sigma$  aus Formel (3.11) zur Anpassung an die experimentellen Daten verwendet. Die Normierungskonstanten  $c_\sigma$  stehen vor den Quelltermen  $S_\sigma$  und bestimmen, wie viele Elektronen pro Spinrichtung angeregt werden.  $S_\sigma$  beinhaltet die Anregung von Elektronen durch die Absorption der Laserpuls und Generation von sekundären Elektronen. Bei der Wahl von  $c_\sigma$  wurde darauf geachtet, dass die Anzahl der angeregten Elektronen einen plausiblen physikalischen Wert annimmt. Die Anzahl von angeregten Elektronen pro Atom betrug maximal für wenige Femtosekunden 0,4. Für genauere Werte müssten umfangreiche Rechnungen gemacht werden, dies würde den Rahmen dieser Arbeit überschreiten. In Tabelle 6.1 sind die verwendeten Werte von  $c_\sigma$  aufgelistet.

Schichtdicke $d$ [nm]	$c_\uparrow$	$c_\downarrow$
4	0,03	0
6	0,03	0
8	0,07	0,1
10	0,1	0,1
12,5	0,2	0,1
15	0,3	0,2
20	0,4	0,3

Tabelle 6.1: **Normierungskonstanten  $c_\sigma$ .** Die Normierungskonstanten wurden verwendet, um die Simulation an die Experimente anzupassen.

Um ein besseres Verständnis der wirkenden Mechanismen und die Auswirkungen auf die magnetooptische Antwort des Systems zu bekommen, werden zuerst die Magnetisierungsdynamik für die  $d = 20$  nm dicke Kobaltschicht und die magnetooptischen Signale diskutiert. Anschließend wird die Schichtdickenabhängigkeit der Signale betrachtet.

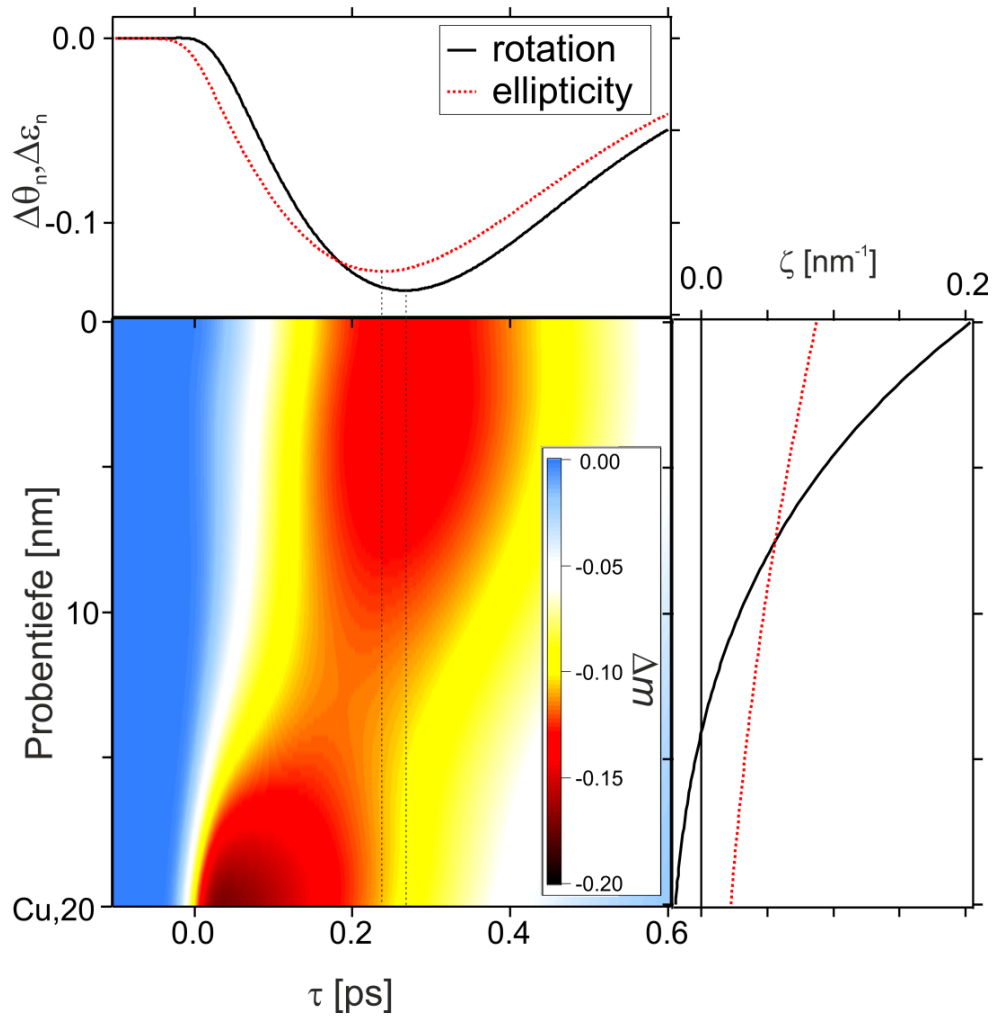


Abbildung 6.15: **Dynamisches Verhalten nach dem kombinierten Modell.** Magnetisierungsdynamik (Falschfarben) und Kerrvariation (oben) ( $\Delta\theta_n(\tau), \Delta\epsilon_n(\tau)$ ) berechnet nach dem kombinierten Modell (Formel (6.4)) für  $d=20$  nm und den (rechts) MOKE-Sensitivitäten. Es entstehen zwei zeitlich getrennte Bereiche mit verstärkter Entmagnetisierung (rot) durch lokale Beiträge (eM3TM) an der Oberfläche und Transporteffekte (SDM) an der Grenzfläche zum Kupfersubstrat. Die Minimumpositionen von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  sind durch gestrichelte Linien eingezeichnet.

In Abbildung 6.15 ist die räumliche und zeitliche Variation der Magnetisierung  $\Delta m(z, t)$  der  $d = 20$  nm Probe, die resultierenden Kurven  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  und die Tiefensensitivitäten beider Observablen dargestellt. In der Abbildung sind zwei Bereiche, in der Nähe der Oberfläche und an der Grenzfläche zum Substrat mit starker Entmagnetisierung (rot), zu

erkennen, welche zeitlich voneinander getrennt sind. Die Entmagnetisierung an der Grenzfläche baut sich mit dem Eintreffen des Laserpulses und an der Oberfläche ca. 150 fs später auf. Die beiden Bereiche entstehen durch die unterschiedlichen Mechanismen in der Magnetisierungsdynamik. Die Entmagnetisierung an der Grenzfläche wird durch den Beitrag des SDM verursacht und an der Oberfläche durch das eM3TM. Dieses Verhalten spiegelt sich auch im magnetooptischen Signal wieder. Die Kerrelliptizität hat eine stärkere Sensitivität an der Grenzfläche als die Kerrrotation und ist deshalb sensitiver auf Transporteffekte. Dies resultiert in einem stärkeren Einbruch von  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  im Vergleich zu  $\Delta\theta_n(\tau)$  mit dem Eintreffen des Laserpulses. Nach der Thermalisierung wächst die Entmagnetisierung an der Oberfläche, wodurch  $\Delta\theta_n(\tau)$  stärker, auf Grund der höheren Oberflächensensitivität, beeinflusst wird. Beide Kurven kreuzen sich und zeigen anschließend ein invertiertes Verhalten  $\Delta\theta_n(\tau) < \Delta\epsilon_n(\tau)$ . Weiterhin regeneriert die Magnetisierung in beiden Bereichen zu unterschiedlichen Zeiten und verursacht somit zeitlich unterschiedliche Minimumpositionen  $\tau_{\min}$  von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\epsilon_n(\tau)$ , siehe Abbildung 6.15.

Nach der Diskussion der  $d = 20$  nm dicken Probe wird im Folgenden die Schichtdickenabhängigkeit betrachtet. In Abbildung 6.16 sind die Variation von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  nach dem kombinierten Modell (Formel (6.4)) für drei exemplarische Schichtdicken  $d = 6; 10; 15$  nm dargestellt. Es wird dasselbe Aufspalten  $\Delta\Phi(\tau) = \Delta\theta_n(\tau) - \Delta\epsilon_n(\tau)$  wie für  $d = 20$  nm beobachtet, wobei mit kleiner werdender Schichtdicke die Aufspaltung der Kurven immer geringer wird, bis keine klaren Unterschiede mehr zu erkennen sind. Dabei nimmt die anfängliche positive Aufspaltung ( $\Delta\Phi > 0|_{\text{Trans}}$ ) mit der Schichtdicke schneller ab als die negative ( $\Delta\Phi < 0|_{\text{Lokal}}$ ), wie auch in den Experimenten beobachtet.

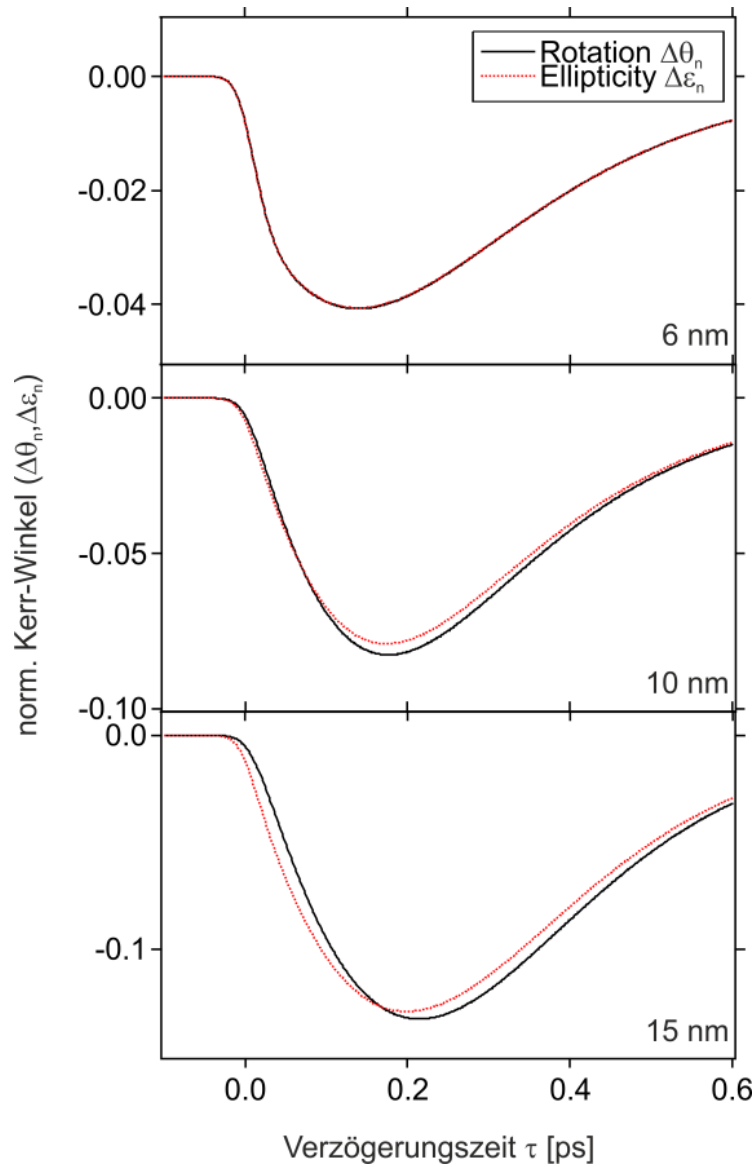


Abbildung 6.16: **Transiente Kerrsignale nach dem kombinierten Modell.** Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarz, durchgezogen) und Kerrelliptizität  $\Delta\epsilon_n(\tau)$  (rot, gestrichelt) für verschiedene Schichtdicken.

Durch die Kombination beider Modelle, eM3TM und SDM, wird ebenfalls das unterschiedliche schichtdickenabhängige Verhalten von  $\tau_{\min}$  beider Observablen reproduzierbar. Aus den simulierten Kurven wurde die Minimumposition bestimmt und gegen die Schichtdicke dargestellt, siehe Abbildung 6.17. Dieses Verhalten von  $\tau_{\min}$  kann nur durch die Kombination beider Mechanismen erzielt werden. In dünneren Schichten  $d < 20$  nm

verursachen die gleichen Mechanismen, wie im Fall der  $d = 20$  nm dicken Probe, diesen Effekt, siehe oben.

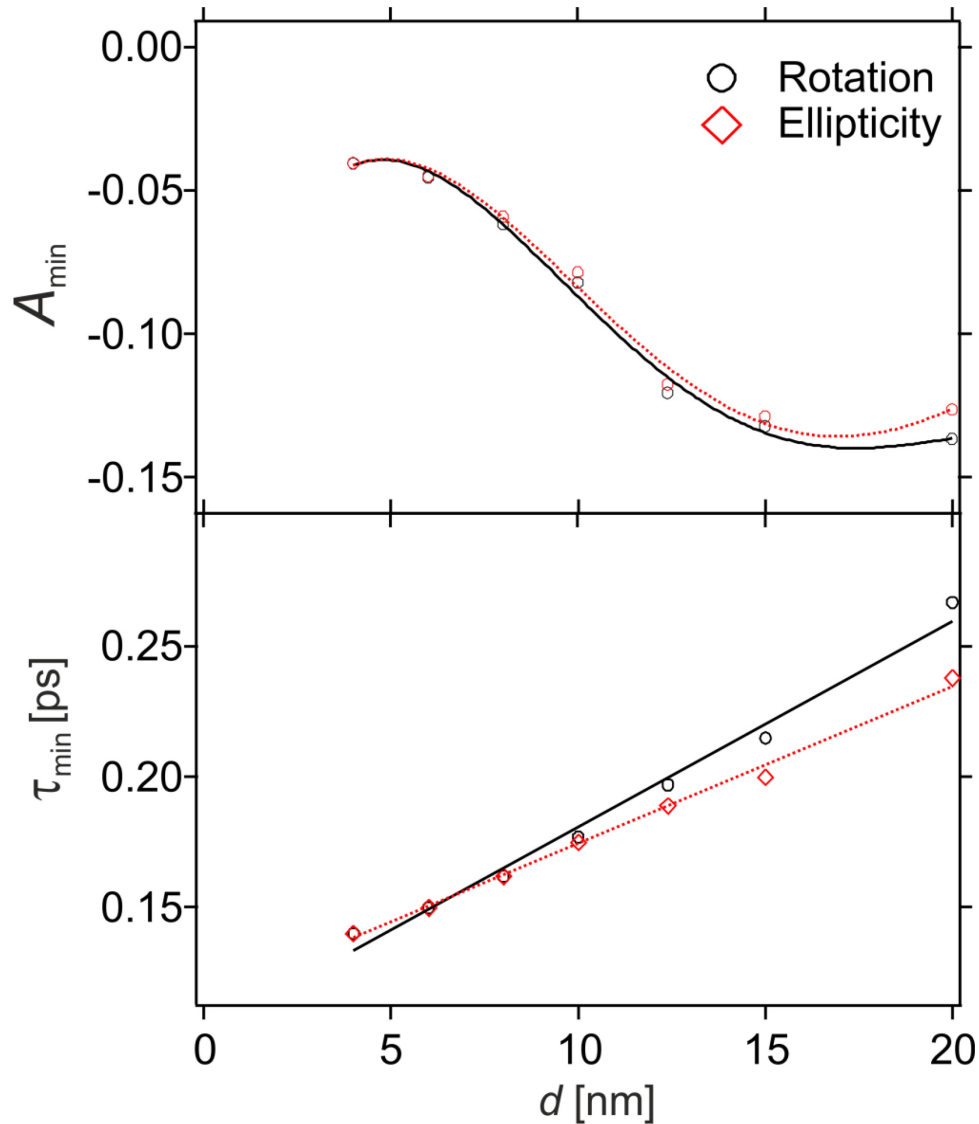


Abbildung 6.17: **Minimumposition (kombiniertes Modell).** Schichtdickenabhängige Position der minimalen magnetooptischen Antwort von  $\Delta\theta_n(\tau)$  (schwarze Kreise) und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  (rote Rauten). (Oben)  $A_{\min}$ : Stärke der Entmagnetisierung, (unten)  $\tau_{\min}$  Zeitverzögerung des Minimums. Durch die Kombination von M3TM und SD entsteht eine Aufspaltung in  $\tau_{\min}$  für  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ . Durchgezogene Kurven sind zur besseren Darstellung eingezeichnet.

### 6.3.2. Transversale Geometrie

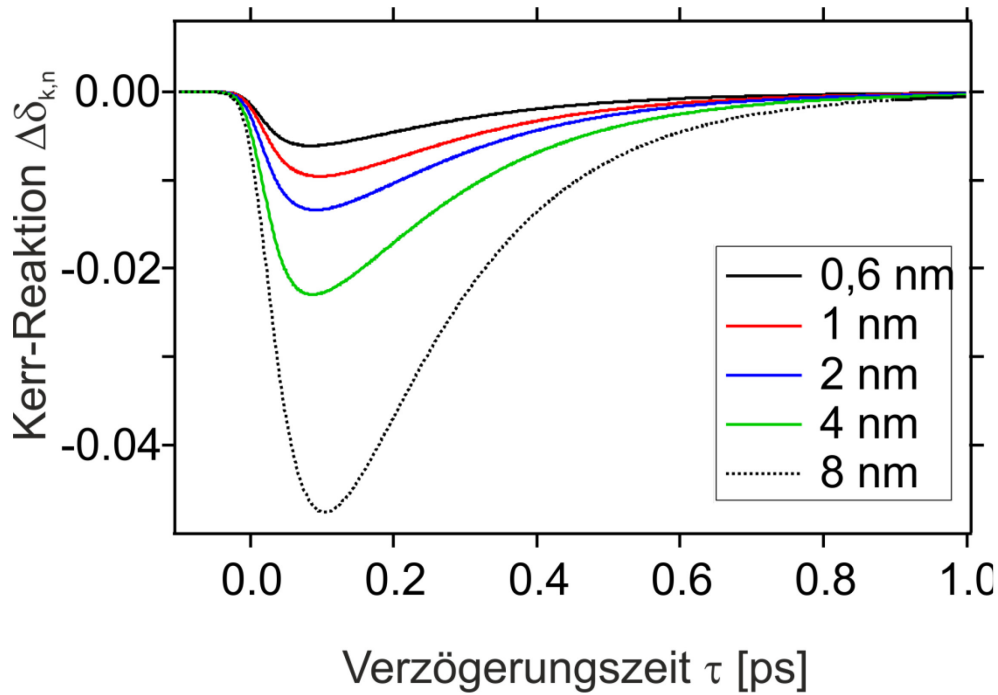


Abbildung 6.18: **Simuliertes transiente Variation von  $\Delta\delta_{k,n}$ .** Variation des magnetischen Kontrastes  $\Delta\delta_k$  für Schichtdicken von  $0,5 \text{ nm} \leq d \leq 8 \text{ nm}$ .

Für Schichtdicken  $d \leq 8 \text{ nm}$  gibt es in der transversalen Geometrie keine Beobachtungen in den Experimenten, die explizit Transporteffekten zugeschrieben werden können. Der magnetische Kontrast  $\delta_k$  alleine ist nicht sensitiv auf diese, in der longitudinalen Geometrie ist dies durch eine Kombination von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  möglich. Daher wurde auf eine Simulation mit dem SDM in der transversalen Geometrie verzichtet. Die Magnetisierungsdynamik wurde ausschließlich nach dem eM3TM berechnet, wobei die absorbierten Fluenzen an die Polarisation (s-Polarisation) der Pumppulse angepasst wurden, siehe Abbildung 6.2. In Abbildung 6.19 sind die laserinduzierten Variationen des magnetischen Kontrastes  $\Delta\delta_{k,n}(\tau)$  dargestellt. Die simulierten Daten zeigen dieselbe

steigende Entmagnetisierung mit wachsender Schichtdicke wie im Experiment und in den Simulationen in der longitudinalen Geometrie beobachtet, welche aus der reduzierten Wärmeleitung in das Kupfersubstrat mit wachsender Kobaltschichtdicke resultiert. Dieser Effekt wurde weiter oben ausführlich diskutiert. Jedoch kann nur ein sehr kleines Wachsen der Entmagnetisierungszeit  $\tau_{\min}$  mit zunehmender Schichtdicke beobachtet werden, siehe Abbildung 6.19. Wahrscheinlich ist der Abtransport der Energie in das Kupfersubstrat zu schnell. In der Simulation werden Wärmewiderstände an der Grenzfläche vernachlässigt, welche die Energietransmission reduziert.

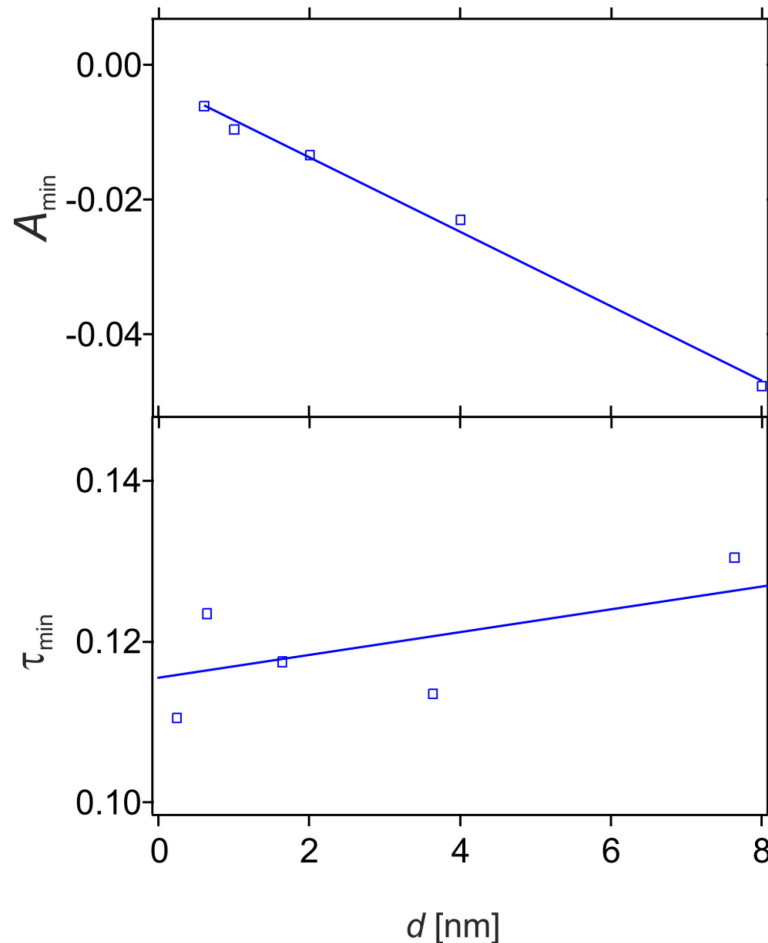


Abbildung 6.19: **Minimumposition von  $\Delta\delta_{k,n}(\tau)$  (M3TM).** Schichtdickenabhängige Position des Minimums. (Oben)  $A_{\min}$ : Stärke der Entmagnetisierung, (unten)  $\tau_{\min}$  Zeitverzögerung. Es kann nur ein sehr geringer Anstieg von  $\tau_{\min}$  mit der Schichtdicke beobachtet werden.



Die  $d = 20$  nm dicke Probe wird aufgrund der besonderen MOKE-Sensitivität gesondert betrachtet. Diese Probe zeigt an der Oberfläche eine negative und an der Grenzfläche zum Kupfersubstrat eine positive Sensitivität für den magnetischen Kontrast  $\delta_k$ , dies kann starke Auswirkungen auf das transiente Signal haben. In den Experimenten wird mit Eintreffen des Laserpulses eine kurzweilige Reduktion des magnetischen Kontrastes von einigen zehn fs beobachtet, wonach dieser wieder anfängt zu steigen und dabei sogar deutlich den Gleichgewichtswert übersteigt, siehe Abbildung 6.9. Die anfängliche Reduktion wird Transporteffekten und der Anstieg Spin-Flip Effekten zugeschrieben, siehe Kapitel 6.2.2. Dieses Verhalten kann in der Simulation mit den gegebenen Parametern nicht reproduziert werden. Das magnetische Signal zeigt nur eine Reduktion nach der Anregung, siehe Abbildung 6.20. Jedoch ist bemerkenswert, dass das Signal für diese Probendicke sehr sensitiv auf leichte Variationen der Parameter reagiert. Durch eine kleine Modifikation der Phase  $\alpha$  von der magneto-optischen Konstante  $q = |q| \cdot e^{i\alpha}$  von  $\alpha = -33^\circ$  auf  $\alpha = -35^\circ$  kann das Verhalten aus dem Experiment reproduziert werden, siehe Abbildung 6.20. Der neue Wert  $\alpha = -35^\circ$  liegt innerhalb der Fehler von  $\alpha$ . Durch diese Modifikation wird der Bereich an der Oberfläche mit einer negativen MOKE-Sensitivität größer und ein größerer Bereich der Entmagnetisierung kann zu einem Anstieg des Signales beitragen. Ein stärkerer Gradient in der Magnetisierung des eM3TM hätte denselben Effekt.

Um mit dieser MOKE-Sensitivität die anfängliche Reduktion von  $\delta_k$  zu erreichen, muss in der Simulation wieder der Transportbeitrag durch das SDM berücksichtigt werden, wodurch die Grenzfläche verstärkt entmagnetisiert wird, siehe Abbildung 6.20. Auf Grund der positiven Sensitivität nimmt das magnetische Signal ab.

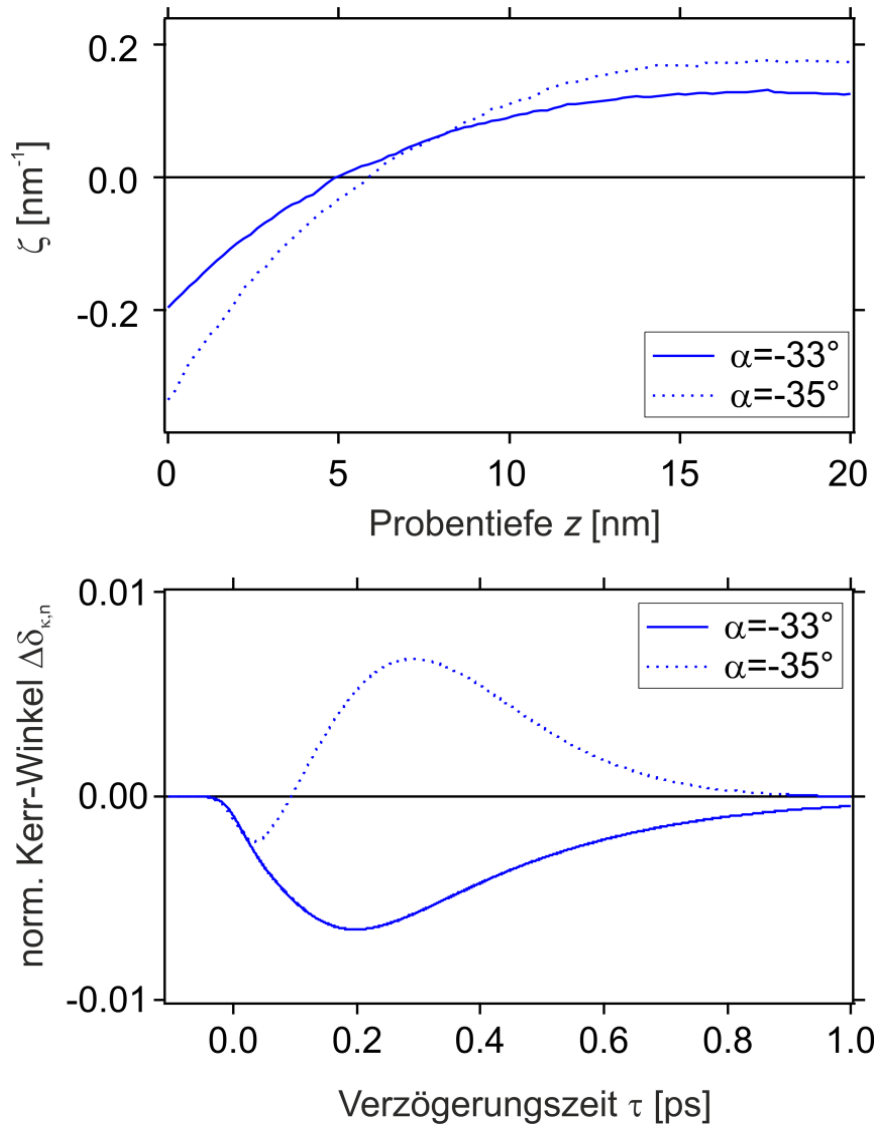


Abbildung 6.20: **Simulation für  $d = 20$  nm in der transversalen Geometrie.** MOKE-Sensitivität (oben) mit einem negativen Bereich an der Oberfläche und einem positiven an der Grenzfläche zum Substrat und Variation des magnetischen Kontrastes  $\Delta\delta_{k,n}$  (unten) für zwei unterschiedliche Phasen  $\alpha$  der magneto-optischen Konstante. Durch die Modifikation findet ein Anstieg  $\Delta\delta_{k,n}$  statt, wie in den Experimenten beobachtet. Die anfängliche Reduktion von  $\delta_k$  ( $\alpha = 35^\circ$ ) wird durch Beitrag des SDM verursacht.

### 6.3.3. Vergleich mit dem Experiment

Durch die Simulation können die Aufspaltungen  $\Delta\Phi(\tau) = \Delta\theta_n(\tau) - \Delta\varepsilon_n(\tau)$  der Kurven und die unterschiedliche Schichtdickenabhängigkeit von  $\tau_{\min}$  von  $\theta(\tau)$  und  $\varepsilon(\tau)$  reproduziert und erklärt werden. Jedoch sind die Aufspaltungen und Unterschiede in den Experimenten deutlicher ausgeprägt als in den Simulationen. Weiterhin musste die MOKE-Sensitivität in der transversalen Geometrie für  $d = 20$  nm leicht modifiziert werden, um die experimentellen Beobachtungen zu reproduzieren. Mögliche Gründe für Abweichungen zum Experiment sind:

- Eine Variation der optischen Parameter in den Experimenten, die ebenfalls zur Aufspaltung beiträgt. Dieser Beitrag sollte aber nicht dominieren, was eine ausführliche Diskussion in Kapitel 6.4 zeigt.
- Die Magnetisierungsprofile fallen zu flach in den Simulationen aus, dies könnte durch die verwendeten Modelle entstehen. In den Modellen wurden viele Vereinfachungen gemacht, welche sich in den Profilen bemerkbar machen können, siehe Kapitel 3.
- Ungenaue optische Parameter, welche zu Abweichungen in den Tiefensensitivitäten führen. Zur Berechnung der Sensitivität wurden Literaturwerte von polykristallinem Kobalt verwendet, diese Struktur entspricht jedoch nicht den untersuchten Proben. Genauere Werte sind nicht verfügbar. Die Tiefensensitivitäten werden durch die optischen Parameter bestimmt und Abweichungen können großen Einfluss auf die Kurven  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  haben, siehe Kapitel 4.6.

Die Simulationen haben ebenfalls Probleme mit der Reproduktion der Regeneration von der Magnetisierung. Die Regeneration findet in der Simulation bedeutend schneller statt als in den

Experimenten, dies kann an einer zu guten Wärmeleitung an der Grenzfläche liegen. In der Simulation wird die Grenzfläche durch einen Sprung in den Materialparametern realisiert und Effekte wie der Wärmewiderstand an der Grenzfläche vernachlässigt. Durch den Widerstand würde die Energie langsamer abfließen und die Regenerierung länger dauern.

Trotz der Unterschiede in den Simulationen im Vergleich zu den Experimenten kann eine Vielzahl der Beobachtungen reproduziert werden. Das Aufspalten der Kurven  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  kann reproduziert werden, wobei das relative Verhalten zu unterschiedlichen Verzögerungszeiten mit den Experimenten übereinstimmt, siehe Abbildung 6.16. Weiterhin zeigen die Simulationen das Aufspalten der Minimumpositionen der magnetooptischen Antworten, siehe Abbildung 6.17. Selbst das außergewöhnliche transiente Verhalten von  $\delta_k$  für  $d = 20$  nm kann reproduziert werden, siehe Abbildung 6.20. Bereits mit einigen Vereinfachungen im Modell ergibt sich ein vollständiges Bild für die Magnetisierungsdynamik für alle Schichtdicken, dies lässt darauf schließen, dass die wesentlichen Mechanismen der Spindynamik und Magnetooptik korrekt wiedergegeben werden.

### 6.4. Variation der optischen Konstante

In dieser Arbeit werden transiente Unterschiede zwischen der normierten Kerrrotation und Kerrelliptizität verwendet, um Rückschlüsse über das Magnetisierungsprofil zu erhalten. Diese Unterschiede wurden in vorherigen Arbeiten nicht berücksichtigt oder durch eine Variation der optischen Konstanten aufgrund der Anregung des elektronischen Systems erklärt [41-43]. Für diese Arbeit können Variationen der optischen Konstanten nicht ausgeschlossen werden. Die Auswirkungen sind aufgrund der vielen Parameter, die in das magnetooptische Signal eingehen, sehr komplex. Das Signal hängt vom Brechungsindex  $\tilde{n} = n + i \cdot k$ , beziehungsweise der dielektrischen Funktion  $\tilde{\epsilon} = \epsilon_1 + i \cdot \epsilon_2 = \tilde{n}^2$ , und der Voigt Konstante

$\tilde{Q} = Q_r + i \cdot Q_i$  ab, die wiederum von der Verzögerungszeit  $\tau$  und der Probentiefe  $z$  abhängen. Dennoch gibt es mehrere Beobachtungen, die nicht mit diesen Variationen erklärt werden können und darauf schließen lassen, dass Inhomogenitäten im Magnetisierungsprofil den wesentlichen Beitrag zum transienten magnetooptischen Signal liefern.

Um die Auswirkungen einer Variation der optischen Konstanten zu untersuchen, wird analysiert welche Variation erforderlich wäre, um die experimentellen Befunde zu reproduzieren. Für Schichtdicken  $d \geq 10$  nm ist das Aufspalten  $\Delta\Phi(\tau) = \Delta\theta_n(\tau) - \Delta\varepsilon_n(\tau)$  für  $t < t^*$  vergleichbar mit dem für  $t > t^*$ , nur mit unterschiedlichen Vorzeichen, siehe Abbildung 6.3. Aufgrund der vielen Parameter für das magnetooptische Signal ist keine exakte Berechnung der Variationen möglich, die erforderlich wären, um die zeitliche Entwicklung der Differenz  $\Delta\Phi(\tau)$  alleine zu beschreiben. Mit einigen Einschränkungen und den transienten Reflexionsdaten (Abbildung A.1) kann dies aber für die  $d = 20$  nm Probe gemacht werden. In Abbildung 6.21 sind die nötigen Variationen für eine homogen angeregte Schicht dargestellt. Die Berechnungen wurden separat für den Brechungsindex und die magnetooptische Konstante gemacht, für eine gleichzeitige Analyse reichen die vorhandenen Informationen nicht aus. Im Experiment kann auch eine kombinierte Variation von  $\tilde{n}$  und  $\tilde{Q}$  aus beiden stattfinden, dennoch kann mit der einzelnen Betrachtung eine grobe Vorstellung über die erforderliche Stärke der Variation erlangt werden. Für die magnetooptische Konstante wurde der Betrag  $|q|$  von  $\tilde{q} = |q| \cdot \exp(i \cdot \alpha)$  konstant gehalten, da eine Variation des Betrags  $|q|$  in den Experimenten nicht von einer Magnetisierungsänderung unterschieden werden kann. Es wurde die Variation der Phase  $\alpha$  untersucht, was äquivalent zu kleinen Änderungen des Quotienten aus Real- und Imaginärteil  $\epsilon_i/\epsilon_r$  ist. Für beide Parameter,  $\tilde{n}$  und  $|q|$ , variiert der Betrag um ein paar Prozent und das Vorzeichen springt, siehe Abbildung 6.21. Dieses Verhalten kann nur sehr schwer durch eine Variation der optischen Parameter hervorgerufen werden, da hierfür ebenfalls das Vorzeichen wechseln und der Betrag konstant sein müsste, dies wäre aber sehr unwahrscheinlich. Die Anregung des elektronischen Systems sollte mit zunehmender Verzögerungszeit monoton fallen, da die Energie aus dem System dissipiert und die elektronische Temperatur fällt, siehe Abbildung 6.10.

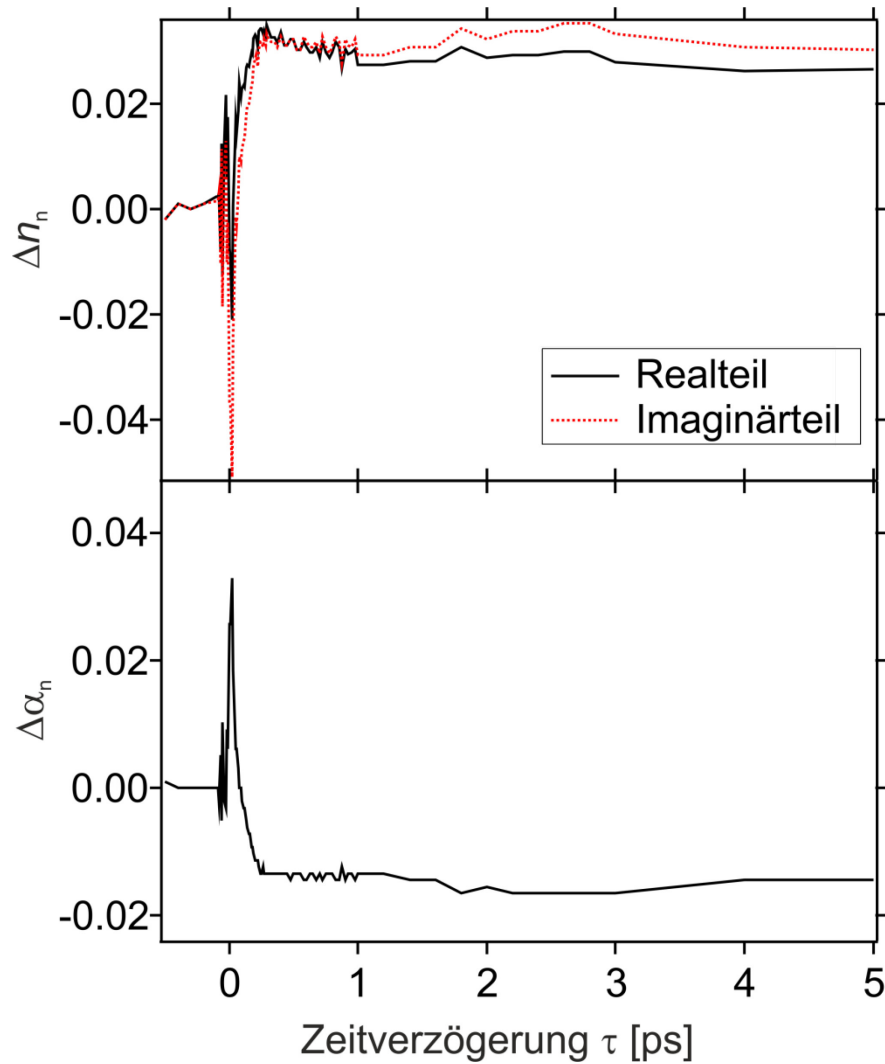


Abbildung 6.21: **Variation von optischen Parametern.** Transiente Variation des Brechungsindex (oben) und der magneto-optischen Konstante (unten) um experimentelle Aufspaltung  $\Delta\Phi(\tau) = \Delta\theta_n(\tau) - \Delta\varepsilon_n(\tau)$  ohne Magnetisierungsgradienten zu reproduzieren. Die Daten wurden mit Hilfe der Reflektionsdaten für  $d = 20$  nm berechnet unter der Annahme einer homogenen Entmagnetisierung.

Ein weiterer Punkt, der gegen eine Variation der optischen Konstante spricht, ist das schichtdickenabhängige Verhalten der Aufspaltung  $\Delta\Phi(\tau)$ . Für  $t < t^*$  nimmt  $\Delta\Phi(\tau)$  viel schneller mit der Schichtdicke ab als für  $t > t^*$ , währenddessen liegt aber eine heiße Elektronenverteilung für alle Schichten vor. Zwar nimmt mit fallender Schichtdicke die

elektronische Temperatur ab, siehe Abbildung 6.10, wie oben beschrieben, aber dies sollte auf Grund der geringen Wärmeleitung im Kobalt im Vergleich zu Kupfer eher längere Zeitskalen beeinflussen. Somit sollte auch die schichtdickenabhängige Aufspaltung  $\Delta\Phi(\tau)$  eher auf längeren Zeitskalen beeinflusst werden. Spinpolarisierter Transport ist hingegen sehr sensitiv auf die Schichtdicke, insbesondere wenn diese im Bereich der mittleren freien Weglänge liegt (siehe Tabelle 3.1), womit das schichtdickenabhängige Verhalten von  $\Delta\Phi(\tau)$  gut erklärt werden kann, siehe Kapitel 3.2.

In früheren Veröffentlichungen wurde als Grund der Variation der optischen Parameter State-Filling-Effekte, beziehungsweise eine heiße Elektronenverteilung genannt [41-43]. Diese Effekte sollten aber relativ kurzlebig sein, da sich das elektronische System sehr schnell abkühlt und damit die Aufspaltung verschwinden müsste. Dies kann aber in den Messungen dieser Arbeit nicht beobachtet werden. Für  $d \geq 8$  nm besteht die Aufspaltung  $\Delta\Phi(\tau)$  bis zum Ende des Messbereiches von  $\tau = 25$  ps, siehe Abbildung 6.4, dies ist aber viel zu lange für eine heiße Elektronentemperatur, siehe Abbildung 6.10. Hingegen können aber Gradienten in  $m(z, t)$  auf diesen Zeitskalen erhalten bleiben. Nach dem Abkühlen des elektronischen Systems nimmt die Rate der Spin-Flip-Streuung ab und die zeitliche Entwicklung von  $m(z, t)$  verlangsamt sich und der Gradient bleibt erhalten. Außerdem könnte auch ein Gradient in der Phonontemperatur für einen Magnetisierungsgradienten auf dieser Zeitskala verantwortlich sein. Für dünnere Schichten  $d < 8$  nm geht  $\Delta\Phi$  gegen Null innerhalb des Messbereiches von  $\tau = 25$  ps, dennoch ist eine Aufspaltung für einige Pikosekunden zu erkennen, siehe Abbildung 6.4. In dünnen Schichten ist aber auch mit einer schnelleren Homogenisierung der Magnetisierung zu rechnen, da sich Gradienten besser abbauen lassen.

Van Kampen [44] hat ebenfalls solch ein Verhalten beobachtet, für Cu(001)/Ni(9 nm)/Cu besteht die Aufspaltung von  $\Delta\theta_n(\tau)$  und  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  über dem gesamten Messbereich von  $\tau \leq 2$  ps (Messdaten über einen längeren Bereich liegen nicht vor). Am Ende des Messbereiches ist noch eine deutliche Aufspaltung zu erkennen. Für Cu(111)/Ni(3 nm)/Cu verschwindet die Aufspaltung bei  $\tau \approx 0,5$  ps. Interessanterweise konnte diese langlebige Aufspaltung  $\Delta\Phi(\tau)$ , für relativ dicke Proben, in den Veröffentlichungen von Comin et. al. [43] für CuO(2.1 nm)/Co(50 nm)/SiO<sub>2</sub>(5,1 nm)/Si und Guidoni et. al. [42] für CoPt<sub>3</sub>(21,5 nm)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nicht beobachtet werden. Beide Observablen ( $\Delta\theta_n(\tau)$ ,  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$ ) haben

sich innerhalb von  $\tau = 500$  fs angeglichen. Anders als in dieser Arbeit wurde aber anstelle eines leitfähigen Substrates ein Isolator verwendet, dies spricht für die Interpretation der unterschiedlichen MOKE-Sensitivitäten und nicht für eine Variation der optischen Parameter. Im Fall eines Isolators kann die deponierte Energie nicht ins Substrat abfließen und die Schicht bleibt länger heiß. Eine Variation der optischen Parameter sollte entsprechend länger verweilen und nicht kürzer. Im Gegensatz dazu gleichen sich, auf Grund von Energiediffusion innerhalb der ferromagnetischen Schicht, Inhomogenitäten schneller aus, da die Energiesenke fehlt und die Schicht kann gleichmäßig entmagnetisieren. Dies hat zur Folge, dass beide Observablen zusammenlaufen, wie beobachtet [41, 43].



# 7. Grenzflächendynamik

In diesem Kapitel werden die Messungen der optischen zweiten Harmonischen (SH: second harmonic) an Co/Cu(001) vorgestellt und analysiert. Wie im vorherigen Kapitel spielen bei der Analyse wieder Magnetisierungsprofile eine zentrale Rolle, trotz der extremen Grenzflächensensitivität der SH, siehe Kapitel 6. Entscheidend bei der Interpretation ist die Berücksichtigung beider Grenzflächen, der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> und der Grenzfläche<sub>Co/cu</sub>. Es werden zuerst die statischen Messungen der SH vorgestellt und analysiert, um ein besseres Verständnis über die Mechanismen zu bekommen, welche das Signal bestimmen. Anschließend wird die Dynamik betrachtet, welche Aufschlüsse über die Magnetisierung und die erzeugten Profile gibt. Dabei werden ausschließlich die Messungen aus der transversalen Geometrie verwendet. In der longitudinalen Geometrie existieren keine Tensorelemente  $\chi_{ij}$  (Formel (4.29)), die einen magnetischen Kontrast bei einer Magnetisierungsumkehr erzeugen und somit eine Analyse ermöglichen.

## 7.1. Statische Schichtdickenabhängigkeit

Nach der Präparation jeder Probe wurde eine Hysteresekurve aufgenommen, welche zur Analyse der statischen SH-Signale verwendet wird, siehe Abbildung 7.1. Die Messungen wurden so schnell wie möglich nach der Präparation durchgeführt, um eine Kontamination der Oberfläche<sub>Vac,Co</sub> gering zu halten, siehe Kapitel 7.1.1. Dennoch kann eine leichte Adsorption von Restgasmolekülen nicht ausgeschlossen werden. Der Transfer von der Präparationsebene zur Messposition und die anschließende Justage der optischen Strahlen dauerte durchschnittlich bis zu einer halben Stunde. Aus den Hysteresekurven wurde die

Zählrate des Photocounters, welche proportional zur Intensität der SH ist, für die unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen (up/down) und Schichtdicken bestimmt, siehe Abbildung 7.1. In der Abbildung sind die unterschiedlichen Intensitäten für Magnetisierung up und down zu erkennen. Die Unterschiede entstehen durch den magnetischen Beitrag in der Suszeptibilität, siehe Kapitel 4.7. Weiterhin fällt auf, dass die Intensität mit der Schichtdicke für beide Magnetisierungsrichtungen stark abfällt und die Differenz beider Kurven kleiner wird.

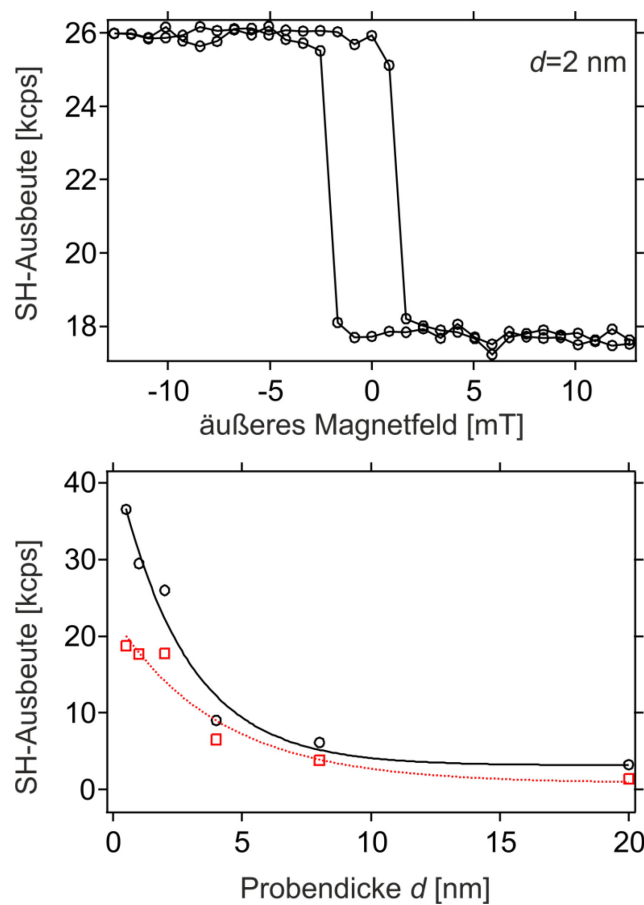


Abbildung 7.1: **Statische SH-Ausbeute für Co/Cu(001).** (oben) Hysteresekurve für  $d = 2$  nm. SH-Intensität in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfeldes. (unten) SH-Intensität als Funktion der Schichtdicke für Magnetisierungsrichtungen up (schwarze Kreise) und down (rote Vierecke). Die Intensität setzt sich aus der Interferenz der Signale von der Oberfläche $_{\text{Vac/Co}}$  und der Grenzfläche $_{\text{Co/Cu}}$  zusammen. Durchgezogene Kurven sind zur besseren Darstellung eingezeichnet

(Einheit SH-Ausbeute: Ereignisse pro Sekunde = **cps**: counts per second )

Zur Analyse der Signale werden die magnetischen und nichtmagnetischen Signale aus der Intensität separiert. Nach Formel (4.34) setzen sich die Intensitäten der zweiten Harmonischen aus

$$I_{2\omega}^{\uparrow\downarrow} = |E_{\text{even}}|^2 + |E_{\text{odd}}|^2 \pm |E_{\text{even}}| \cdot |E_{\text{odd}}| \cdot \cos(\Delta\alpha) \quad (7.1)$$

zusammen, wobei  $E_{\text{even}}$  der nichtmagnetische und  $E_{\text{odd}}$  der magnetische Beitrag des elektrischen Feldes der SH und  $\Delta\alpha$  die Phase zwischen beiden Feldern ist. Die Pfeile und das Vorzeichen kennzeichnen die unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen. Daraus folgt:

$$|E_{\text{even}}| \approx \sqrt{\frac{I^{\uparrow} + I^{\downarrow}}{2}} \quad (7.2)$$

und

$$|E_{\text{odd}}| \cdot \cos(\Delta\alpha) \approx \frac{I^{\uparrow} - I^{\downarrow}}{4 \cdot |E_{\text{even}}|}. \quad (7.3)$$

Formel (7.3) beinhaltet die Phasendifferenz  $\Delta\alpha$ , welche nicht separiert werden kann. Dies würde eine interferometrische Messung wie in Referenz [87] erfordern, die mit dem vorhandenen experimentellen Aufbau nicht möglich ist.

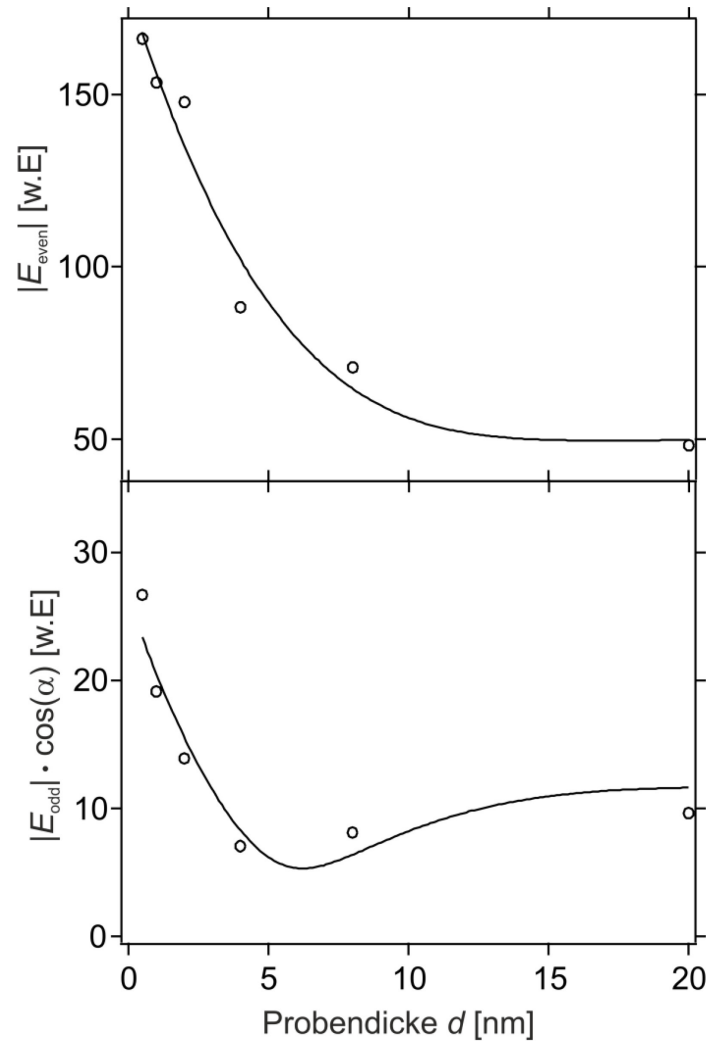


Abbildung 7.2: **Magnetisches und nichtmagnetisches Signal der SH als Funktion der Schichtdicke.** Messpunkte sind als schwarze Kreise dargestellt. Die nichtmagnetischen Signale (oben) wurden mit den Daten aus Abbildung 7.2 nach Formel (7.2) und die magnetischen mit Formel (7.3) berechnet. Durchgezogene Kurven stellen Fits nach Formeln (7.4) bis (7.8) dar, die Fitparameter sind in Tabelle 7.1 aufgelistet. Die Abhängigkeit der Signale von der Schichtdicke entsteht durch Interferenz des elektrischen Feldes der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> und der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub>.

In Abbildung 7.2 ist das magnetische und nichtmagnetische Signal dargestellt. Das nichtmagnetische Signal fällt durchgehend mit der Schichtdicke und das magnetische Signal fällt bis 4 nm und steigt anschließend leicht an. Dieses Verhalten entsteht durch die

unterschiedlichen Beiträge beider Grenzflächen (Vac/Co und Co/Cu). Die elektrischen Felder der SH

$$E_i = E_i^0 + E_i^I, \quad (7.4)$$

mit  $i = (\text{even}, \text{odd})$ , setzt sich aus den beiden Beiträgen der Oberfläche  $E_i^0$  und der Grenzfläche  $E_i^I$  zusammen. Die einzelnen Beiträge können nach Formel (4.33) zu

$$E_{\text{even}}^0 = A_0 \cdot E_{\omega,o}^2, \quad (7.5)$$

$$E_{\text{even}}^I = A_I \cdot E_{\omega,I}^2, \quad (7.6)$$

$$E_{\text{odd}}^0 = m_0 \cdot B_0 \cdot E_{\omega,o}^2 \cdot U \quad (7.7)$$

und

$$E_{\text{odd}}^I = m_I \cdot B_I \cdot E_{\omega,I}^2 \cdot U \quad (7.8)$$

umgeschrieben werden, wobei  $m_0, m_I$  die normierte Magnetisierung der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> bzw. der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> sind. Das elektrische Feld der Fundamentalen an der Oberfläche ist  $E_{\omega,o}^2$  und an der Grenzfläche  $E_{\omega,I}^2$ . Die Faktoren  $A_0, A_I, B_0$  und  $B_I$  sind Linearkombination aus

Fresnelfaktoren und Tensorelementen, siehe Kapitel 4.7. Im den Felder der Grenzfläche steht noch zusätzlich die Funktion

$$U_\lambda(d) = \exp\left(i \cdot \frac{2\pi}{\lambda} n_\lambda \cdot d \cdot \alpha_z\right) = |U| \cdot \exp(i \cdot \mu), \quad (7.9)$$

wobei  $\lambda$  die Wellenlänge und  $\alpha_z = \cos(\varphi_t)$  mit dem Winkel zur Oberflächennormalen  $\varphi_t$  im Kobalt der SH ist [65]. Der Betrag  $|U|$  beschreibt die Dämpfung und die Phase  $\mu$  die Phasenverschiebung während der Propagation des elektrischen Feldes  $E$  der SH durch die Materie. Nach den Formeln (7.5) bis (7.8) geht in die Erzeugung der SH das Quadrat des elektrischen Feldes der Fundamentalen  $E_\omega^2$  ein, welches wiederum von der Schichtdicke abhängt. In Abbildung 7.3 ist  $E_\omega^2$  an der Oberfläche und an der Grenzfläche in Abhängigkeit der Schichtdicke dargestellt. Für die Berechnung wurden die Brechungsindizes für polykristalline Proben genommen,  $n_{cu} = 0,26 + i \cdot 5,26$  und  $n_{co} = 2,56 + i \cdot 4,92$  [88]. Bei der Berechnung wurden Mehrfachreflektionen innerhalb der Schicht berücksichtigt. Es ist zu erkennen, dass die Feldstärke an der Grenzfläche, und damit der Beitrag zur SH, mit wachsender Schichtdicke abnimmt, dies entsteht durch die Dämpfung in der Kobaltschicht.

Die Beiträge der elektrischen Felder von der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> und der Oberfläche<sub>vac/Co</sub> können interferieren, dies ist in den Observablen der SH,  $|E_{\text{even}}|$  und  $|E_{\text{odd}}| \cdot \cos(\Delta\alpha)$ , detektierbar. Im magnetischen Signal  $|E_{\text{odd}}| \cdot \cos(\Delta\alpha)$  können noch zusätzliche Interferenzeffekte zwischen magnetischem und nichtmagnetischem Signal durch den Faktor  $\cos(\Delta\alpha)$  auftreten.

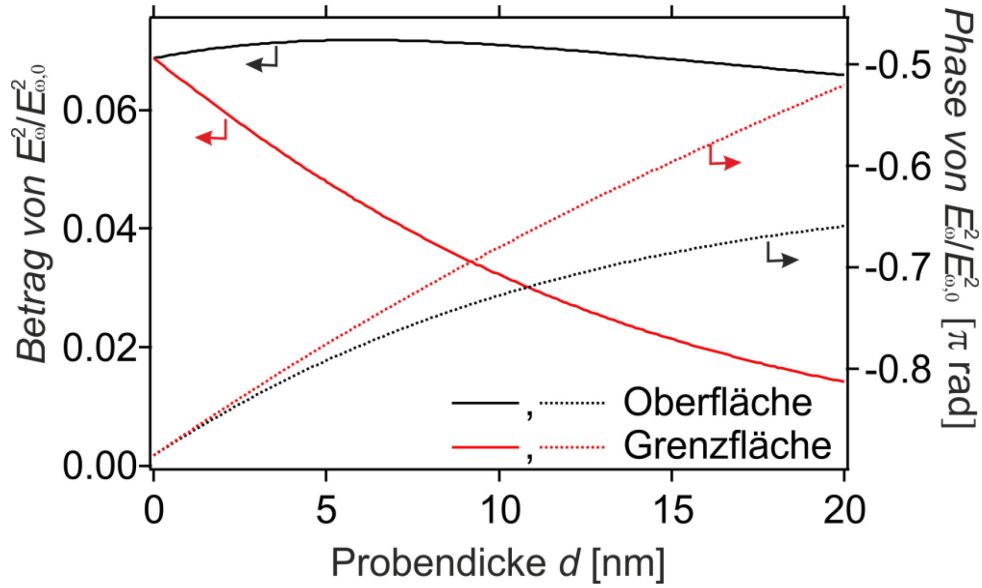


Abbildung 7.3: **Normiertes  $E_{\omega}^2$  an der Oberfläche und Grenzfläche.** Normiertes Quadrat der elektrischen Feldstärke der Fundamentalen  $E_{\omega}^2$  an der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> (schwarz) und der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> (rot). Auf der linken Achse ist der Betrag und rechten Achse die Phase dargestellt. Die Werte sind auf die eingestrahlte elektrische Feldstärke  $E_{\omega,0}$  normiert. Bei der Berechnung wurden Mehrfachreflektionen innerhalb der Kobaltschicht berücksichtigt.

$|E_{\text{even}}|$  und  $|E_{\text{odd}}| \cdot \cos(\Delta\alpha)$ , aus Abbildung 7.2 wurden mit den Formel (7.4) bis (7.8) gefittet. Dabei wurden die Beträge ( $|A^0|, |A^1|, |B^0|, |B^1|$ ) und die Phasendifferenzen ( $\Delta\varphi_{\text{even}} = \varphi_{A^0} - \varphi_{A^1}, \Delta\varphi_{\text{odd}} = \varphi_{B^0} - \varphi_{B^1}$ ) als Fitparameter verwendet, wobei  $\varphi_k$ <sup>1</sup> die Phasen der entsprechenden Faktoren sind. Für die Brechungsindizes  $n_{800} = 2,56 + i \cdot 4,92$  und  $n_{400} = 1,25 + i \cdot 3,05$  wurden Literaturwerte verwendet [88]. Im magnetischen Fall wurde die Phasendifferenz  $\Delta\alpha$  zwischen nichtmagnetischem und magnetischem Feld gleich Null gesetzt. Für sehr dünne Schichten (einige Monolagen) wurde dieser Wert von

<sup>1</sup> Die Phasen der Oberflächenfaktoren wurden  $\varphi_{A^0} = 0$  und  $\varphi_{B^0} = 0$  gesetzt, dies entspricht einer zeitlichen Koordinatentransformation.

Conrad et al. [87] gemessen. Für größere Schichtdicken liegen keine Werte vor. Die Fits sind ebenfalls in Abbildung 7.2 dargestellt und die Fitparameter sind in Tabelle 7.1 aufgelistet.

Diese Interpretation der Daten impliziert, dass  $A^0, A^I, B^0$  und  $B^I$  während des Wachstums nicht modifiziert werden, dies ist aber nicht zwingend erfüllt. Durch das Wachstum kann sich die Oberflächenrauigkeit verändern, wodurch die erzeugten elektrischen Felder beeinflusst werden. Für den vorliegenden Dickenbereich liegen aber keine Informationen über die Rauigkeit und den Einfluss auf die SHG vor. In der Literatur finden sich nur Messungen für ultradünne Kobaltschichten bis einige Monolagen [89, 90]. Der Einfluss der Rauigkeit auf das SH-Signal wird aber als gering eingestuft. Mit zunehmender Schichtdicke sollte sich die Oberflächenrauheit vergrößern, wodurch stärkere elektrische Felder, auf Grund der größeren Oberfläche, entstehen würden. Dieses Verhalten ist jedoch nicht in den Daten zu erkennen, siehe Abbildung 7.2. Die nichtmagnetische Feldstärke  $E_{\text{even}}$  wird mit der Schichtdicke bis  $d = 20$  nm kleiner, dies spricht gegen diese Vermutung. Das magnetische Feld  $E_{\text{odd}}$  hingegen wird nur bis 4 nm kleiner und steigt anschließend wieder, dies sollte aber ebenfalls nicht mit der Rauigkeit der Oberfläche zusammenhängen, da die Rauigkeit beide Felder  $E_{\text{even}}^0$  und  $E_{\text{odd}}^0$  gleichzeitig beeinflussen müsste. Weiterhin kann es zu Mehrfachreflektionen der SH innerhalb der Kobaltschicht kommen, wodurch das Signal beeinflusst werden könnte. Für Mehrfachreflektionen muss die SH mindestens einmal an der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> reflektiert werden und mindestens zweimal durch die Schicht propagieren. Aufgrund der hohen Dämpfung in Kobalt und den geringen Reflektionskoeffizienten der SH  $r_{2\omega} = 0,13$  an der Grenzfläche, sollte dieser Effekt eine untergeordnete Rolle spielen.

Die ermittelten Fitparameter sind auf Grund der Datenmenge und der gemachten Annahmen nicht sehr genau, dennoch vermitteln sie einen guten Einblick über die Relationen der Beiträge. Die Feldstärke der Grenzfläche sind ca. 3 Mal größer als die der Oberfläche. Im magnetischen Fall sind die Beiträge der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> und Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> um ca.  $180^\circ$  phasenverschoben und interferieren destruktiv für dünne Schichten.



Fitparameter	Wert	$\pm$ Fehler
$ E_{\text{even}}^{\text{o}} $	814	190
$ E_{\text{even}}^{\text{l}} $	2313	380
$\Delta\varphi_{\text{even}}$	78	27
$ E_{\text{odd}}^{\text{o}} $	180	38
$ E_{\text{odd}}^{\text{l}} $	564	62
$\Delta\varphi_{\text{odd}}$	184	15

Tabelle 7.1: **Parameter der Fits aus Abbildung 7.2.** Die Fits in der Abbildung wurden mit Formel (7.4) bis (7.8) berechnet. Im nichtmagnetischen und magnetischen Fall sind die Beiträge der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> größer als die der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub>. Für die magnetischen Beiträge ist die Phasendifferenz annähernd  $\Delta\varphi_{\text{odd}} \approx 180^\circ$  und die elektrischen Felder der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> und Grenzflächen<sub>Co/Cu</sub> interferieren für dünne Schichten destruktiv.

### 7.1.1. Adsorption von Restgasmolekülen

Die Erzeugung der SH ist in zentrosymmetrischen Systemen, wie Co/Cu(001), extrem grenzflächensensitiv und ermöglicht es somit, selbst Bedeckungen im submonolagen Bereich zu detektieren und zu erforschen [91-94]. Um eine Kontamination mit Restgasmolekülen zu minimieren, werden aus diesem Grund die Experimente in einer UHV-Umgebung durchgeführt. Dennoch kann eine Kontamination nicht vollständig verhindert werden. In einem idealisierten System, mit einem Haftkoeffizienten von  $\alpha = 1$ , beträgt die Dosis  $D$  zur Adsorption einer Monolage (ML) von Molekülen  $D = 1 L$ . Die Dosis wird in Langmuir  $L = 1,33 \cdot 10^{-6} \text{ mbar} \cdot \text{s}$  angegeben und besitzt eine Dimension aus Druck Mal Zeit und der

Haftkoeffizient  $\alpha$  gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass ein auf die Oberfläche treffendes Molekül an dieser haften bleibt. Bei einem Basisdruck  $P = 5 \cdot 10^{-11}$  mbar, in den Experimenten dieser Arbeit der Fall, entspricht dies einer Zeit von  $t_{\text{Mono}} \approx 18,5$  h. Typische Messdauern der Experimente lagen im Bereich von 24-48 h. In einem nicht idealen System,  $\alpha \neq 1$ , kann der Haftkoeffizient  $\alpha(\theta, T, P)$  von der Bedeckung  $\theta$ , der Temperatur  $T$  und dem Druck  $P$  abhängen. Dennoch kann mit der Annahme eine grobe Vorstellung erhalten werden, innerhalb welcher Zeit mit einer „sauberen“ Oberfläche zu rechnen ist. Bridge et al. [95] detektierten, bei Raumtemperatur ( $T = 300$  K), eine Bedeckung von ca. 0,3 ML von CO-Molekülen auf einer Co(0001) Oberfläche nach einer Dosis von  $D = 3$  L. Die Bedeckung blieb bis zur einer Dosis von  $D = 8$  L relativ konstant.

Welche Moleküle oder Atome auf der Kobaltoberfläche adsorbieren ist nicht genau bekannt. Im Restgas befinden sich Wasserstoff, Wasser, Kohlenmonoxide und Kohlendioxid, siehe Abbildung 7.4. Zur Untersuchung der Kontamination wurden Auger-Spektren von der Oberfläche aufgenommen, aber die Auflösung des Augerspektrometers reichte nicht aus, um die Zusammensetzung eindeutig zu bestimmen. Weiterhin stieg der Druck während der Aufnahme des Spektrums auf  $P = 2 \cdot 10^{-9}$  mbar an, wodurch die Messungen grundlegend verfälscht wurde. Es konnte lediglich eine Kontamination mit Kohlenstoffatomen, die sich mit der Zeit aufgebaut hat, auf der Oberfläche nachgewiesen werden, siehe Abbildung 7.4. Nach ca. 20 – 30 min, einer Dosis von  $D \approx 5$  L, sättigt die Kontamination, dies ist ungefähr der Wert von Referenz [95] und lässt vermuten, dass CO-Moleküle auf der Oberfläche absorbieren.

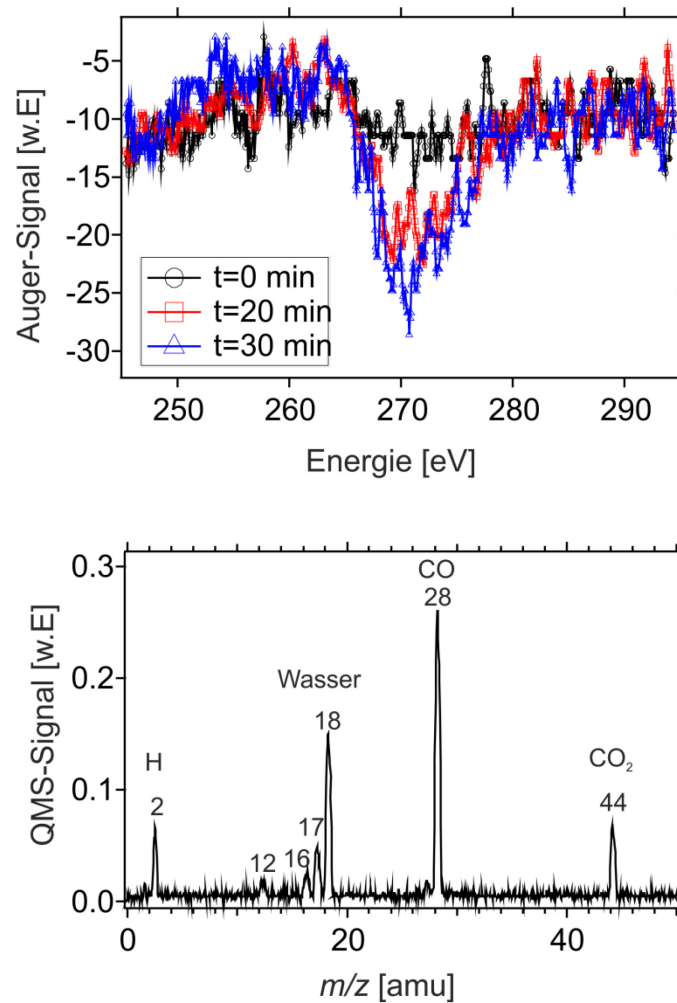


Abbildung 7.4: **Auger- und QMS-Spektren zur Untersuchung der Oberflächenkontamination.** (oben) Augerspektrum an der C K Kante von Kohlenstoff für verschiedene Zeiten bei einem Druck von  $P \approx 2 \cdot 10^{-9}$  mbar. Innerhalb von 20 – 30 Min baut sich der Kohlenstoffpeak auf. (unten) Quadrupol Massenspektrum bei einem Druck von  $P = 4 \cdot 10^{-10}$  mbar. Im Restgas befinden sich Wasserstoff, Wasser, Kohlenmonoxid und Kohlendioxid.

Die Adsorption von Restgasmolekülen auf der Oberfläche<sub>Co/Cu</sub> hat merkliche Auswirkungen auf die Messungen der zweiten Harmonischen. Die Signale der statischen und dynamischen SH-Messungen verändern sich mit zunehmendem Probenalter und diese Veränderungen können auf die Kontamination der Probe zurückgeführt werden. Die statischen SH-Signale werden in diesem Unterkapitel und die dynamischen Signale im nächsten diskutiert. Dabei

wurden die statischen Signale aus den zeitaufgelösten Messungen extrahiert, dies ist auf Grund der Messung mit dem Chopper und Photocounter möglich. Der Chopper blockiert periodisch die Pumppulse ( $f = 500$  Hz), wodurch die statischen Signale mit Hilfe des Photocounters detektiert werden konnten, siehe Kapitel 5. Dies ermöglicht es, die dynamischen Messungen direkt mit der Kontamination zu korrelieren. Zur Korrelation eignet sich der magnetische Kontrast  $\delta_{\text{SHG}}$ <sup>2</sup>, der analog zum magnetischen Kontrast  $\delta_k$  (Formel (4.6)) der Kerrmessungen definiert wird,

$$\delta_{\text{SHG}} = \frac{I^\uparrow - I^\downarrow}{I^\uparrow + I^\downarrow} = 2 \cdot \frac{|E_{\text{odd}}|}{|E_{\text{even}}|} \cdot \cos(\Delta\alpha). \quad (7.10)$$

Der magnetische Kontrast  $\delta_{\text{SHG}}$  ist unabhängig von der Intensität der Fundamentalen und somit auch von Intensitätsschwankungen. Die zeitliche Entwicklung des Kontrastes hängt von der Probendicke ab, wobei für jede Dicke der Kontrast nach der Präparation anfängt zu steigen, siehe Abbildung 7.6 bis Abbildung 7.8. Nach ca.  $t \approx 20$  h erreicht dieser einen Sättigungswert und verändert sich nicht mehr, soweit dies aus den Daten entnommen werden kann. Die Sättigung des Kontrastes kann nicht für jede Probendicke verifiziert werden, die Messdauer war dazu nicht immer ausreichend. Die Messungen konzentrierten sich auf die Dynamik der Kobaltschicht, gemessen mit dem MOKE und wurden nach dem Erreichen einer angemessenen Statistik abgebrochen, siehe Kapitel 6.2.2. In der Analyse werden die Messsignale der frisch präparierten Proben zur Interpretation verwendet und Daten von kontaminierten Oberflächen der Vollständigkeit gezeigt. Aus diesen konnten keine zusätzlichen Informationen gewonnen werden, da zu wenige Informationen über die Kontamination und Auswirkungen auf die SH vorliegen.

---

<sup>2</sup> In der Literatur werden unterschiedliche Vorfaktoren für den magnetischen Kontrast verwendet.

Es kann davon ausgegangen werden, dass die Laserintensität nicht ausreichte, um eine merkliche Anzahl von Restgasmolekülen zu desorbieren, da der Kontrast weitestgehend unabhängig von der Probenposition ist, dies wurde während der Messung überprüft.

## 7.2. Zeitaufgelöste magnetische Messungen der zweiten Harmonischen

Die zeitaufgelösten Messungen der zweiten Harmonischen wurden simultan zu den MOKE-Messungen aufgenommen, wobei das SHG-Signal durch einen dichroitischen Spiegel separiert wurde, siehe Kapitel 5. Die Messungen wurden in der transversalen Geometrie (Abbildung 4.1) durchgeführt, wobei die Polarisationen gekreuzt wurden, um die Auswirkungen des kohärenten Artefaktes zu minimieren, siehe Kapitel 5.1.1. Für alle Schichtdicken wurde eine eingestrahlte Fluenz  $F = 6 \text{ mJ/cm}^2$  verwendet. In Abbildung 6.2 sind die resultierenden absorbierten Fluenzen in Abhängigkeit der Schichtdicke dargestellt.

Das magnetische Signal  $\Delta_{\text{odd}}$  zeigt ein sehr komplexes transientes Verhalten mit der Probendicke und der Oberflächenkontamination der Probe. Um ein besseres Verständnis der zu Grunde liegenden Dynamik zu erhalten, wird zuerst das Verhalten von  $\Delta_{\text{odd}}$  unter der Annahme von konstanten optischen Parametern und anschließend die Auswirkung einer Variation der optischen Parameter diskutiert. Unter der Annahme konstanter optischer Parameter und mit Berücksichtigung beider Grenzflächendynamiken (Vac/Co und Co/Cu) kann  $\Delta_{\text{odd}}$  (Formel (4.37)) mit den Formeln (7.4) bis (7.8) in erster Ordnung zu

$$\Delta_{\text{odd}} = \Delta m_0 + \text{Int}(d) \cdot \delta m \quad (7.11)$$

umgeschrieben werden, wobei  $\Delta m_0 = 1 - m_0(\tau)$  die Änderung der Oberflächenmagnetisierung und  $\delta m = m_0(\tau) - m_1(\tau)$  die Differenz der normierten Oberflächen-  $m_0$  und Grenzflächenmagnetisierung  $m_1$  ist. Der Faktor

$$Int(d) = \Re \left( \frac{B^I \cdot E_{\omega,I}^2(d) \cdot U(d)}{B^O \cdot E_{\omega,O}^2(d) + B^I \cdot E_{\omega,I}^2(d) \cdot U(d)} \right) \quad (7.12)$$

beschreibt die Interferenz beider Grenzflächenbeiträge und beinhaltet die Dämpfung und Propagation des elektrischen Feldes in der Kobaltschicht. Bei dieser Betrachtung wurde die Phasendifferenz  $\Delta\alpha$  von nichtmagnetischem und magnetischem Signal als konstant angesehen. Eine Variation der Phase  $\Delta\alpha$  würde ebenfalls in  $\Delta_{\text{odd}}$  detektiert werden. Die Phase  $\Delta\alpha$  kann durch eine Magnetisierungsdifferenz  $\delta m$  oder durch eine Variation der optischen Parameter beeinflusst werden. Die Einflüsse von  $\delta m$  auf die Phase  $\Delta\alpha$  kann aber durch eine modifizierte Interferenzfunktion ausgedrückt werden und Formel (7.11) wäre weiterhin gültig. Die Variation von optischen Parametern wird in Kapitel 7.2.1 diskutiert.

In Abbildung 7.5 ist das Verhalten von  $Int(d)$  gegenüber der Probendicke für die Fitparameter aus Tabelle 7.1 dargestellt. Die Funktion hat positive und negative Bereiche, die durch konstruktive und destruktive Interferenz entsteht. Es ist zu erkennen, dass die Interferenz beider Grenzflächen für nicht zu dicke Schichten einen merklichen Beitrag zur Dynamik haben kann. Für die ersten 7 nm ist  $Int > 1$  und kann deutlich über die Differenz der Grenzflächenmagnetisierung  $\delta m$  zur Gesamtdynamik beitragen, siehe Formel (7.12). In Kapitel 6 wurde gezeigt, dass Magnetisierungsprofile und damit  $\Delta m$  nicht zu vernachlässigen sind. Um ein besseres Verständnis von  $Int(d)$  zu bekommen und für eine spätere Diskussion, wird die Phasendifferenz  $\Delta\varphi_{\text{odd}}$  innerhalb der Fitfehler von  $184^\circ$  auf  $199^\circ$  variiert und die neue Funktion  $Int_{199}(d)$  zusätzlich in Abbildung 7.5 dargestellt. Durch die Variation ist  $Int_{199}(d)$  in weiteren Schichtdickenbereichen positiv, negative Bereiche werden kleiner. Dies zeigt, die Interferenz der Grenzflächendynamik hängt deutlich von den Parametern ab und Ungenauigkeiten in den Parametern müssen in der Analyse berücksichtigt werden.

Durch Kontamination der Probenoberfläche durch Restgasmoleküle kann ebenfalls die Interferenzfunktion  $Int(d)$  beeinflusst werden. Die Kontamination modifiziert die elektronische Struktur der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> und das Verhältnis von Oberflächen- und Grenzflächenbeiträgen in Formel (7.12) wird verändert. Dadurch kann sich die Schichtdickenabhängigkeit von  $Int(d)$  verändern und die Differenz  $\delta m$  kann in einem anderen Verhältnis zur Dynamik beitragen.

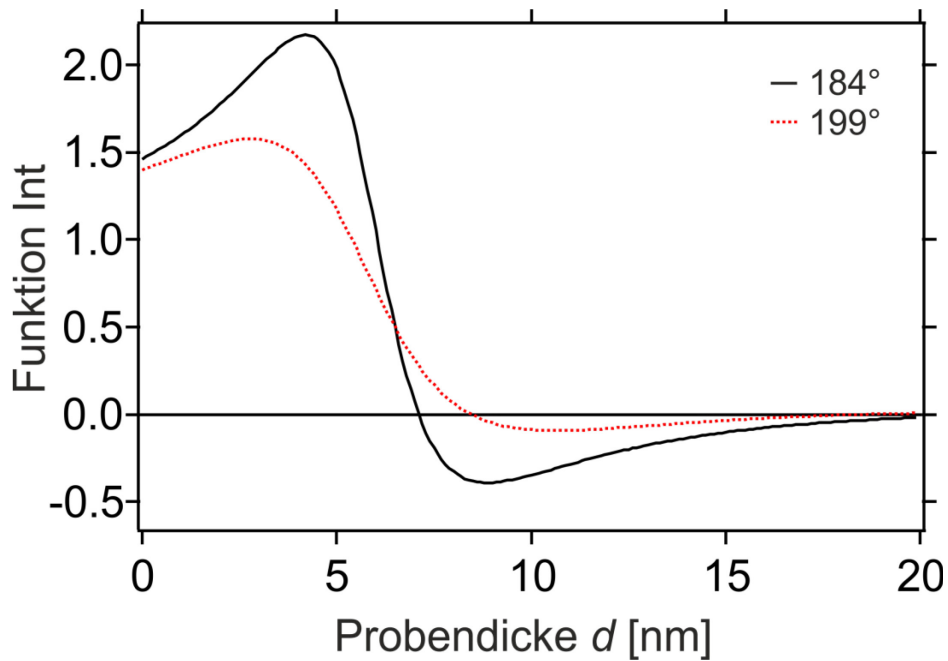


Abbildung 7.5: **Interferenzfunktion der beiden Grenzflächen von Co/Cu(001).** Die Interferenzfunktion beschreibt die Interferenz der elektrischen Felder von der Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> und der Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub> in Abhängigkeit mit der Schichtdicke. Für die schwarze durchgezogene Kurve wurden die Parameter aus Tabelle 7.1 verwendet. Zur Berechnung der roten, gestrichelten Kurve wurde die Phasendifferenz auf  $\Delta\varphi_{\text{odd}} = 199^\circ$  variiert.

In den Experimenten wurde die Magnetisierungsdynamik von unterschiedlichen Probendicken  $d = 0,5; 1; 2; 4; 8; 20$  nm gemessen. Die Ergebnisse werden in drei Dickenbereiche auf Grund ihrer qualitativ unterschiedlichen transienten Verläufe eingeteilt:

(1) „Dünne“ Schichtdicken mit  $d = 0,5; 1$  nm, (2) „Mittlere“ Schichtdicken mit  $d = 2; 4$  nm und (3) „Dicke“ Schichtdicken mit  $d = 8; 20$  nm.

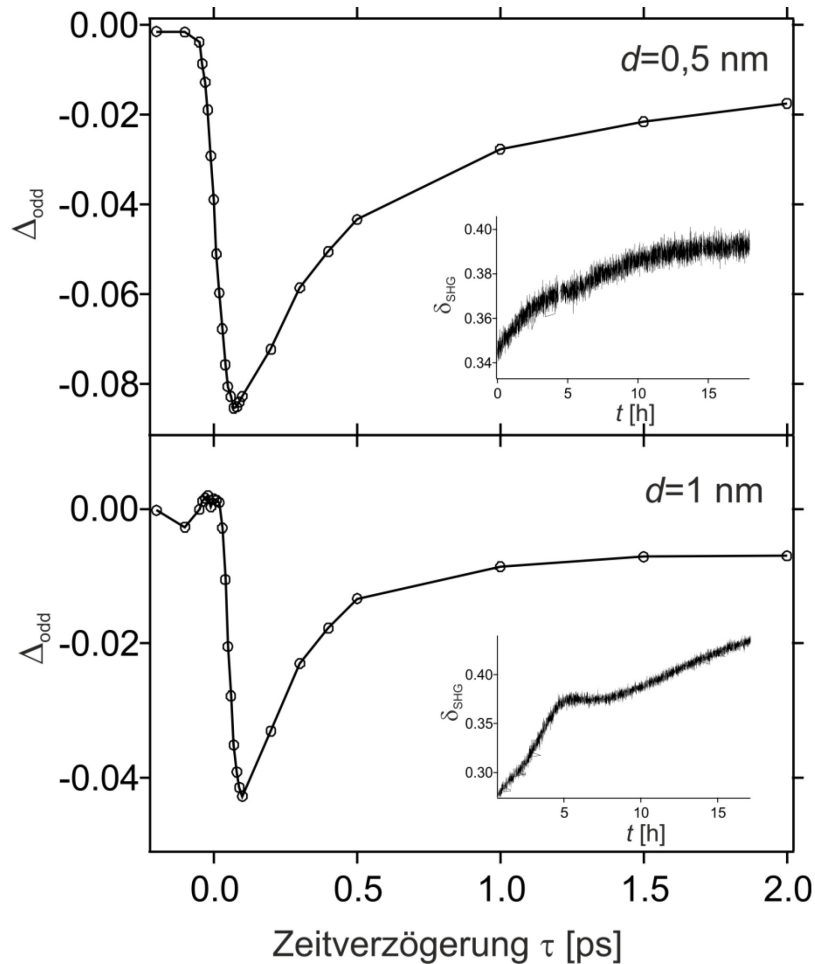


Abbildung 7.6: **Transienter Verlauf von  $\Delta_{\text{odd}}$  für dünne Schichtdicken.** (oben)  $d = 0.5$  nm (unten)  $d = 1$  nm. Für  $d = 1$  nm ist die maximale Variation des magnetischen Signals kleiner als für  $d = 0.5$  nm, dies wird durch Interferenzeffekte der Magnetisierungsdynamiken beider Grenzflächen im System verursacht. Der transiente Verlauf ist unabhängig von der Oberflächenkontamination. (Nebenbilder) Magnetischer Kontrast  $\delta_{\text{SHG}}$  als Funktion des Probenalters.



Für dünne Schichtdicken  $d = 0,5; 1$  nm ist der transiente Verlauf von  $\Delta_{\text{odd}}$  in Abbildung 7.6 dargestellt. Das magnetische Signal bricht nach Eintreffen des Pumpimpulses ein und fängt nach einigen zehn Femtosekunden an zu regenerieren. Interessanterweise zeigt  $\Delta_{\text{odd}}$  eine größere maximale Variation für  $d = 0,5$  nm als für  $d = 1$  nm, dies ist entgegengesetzt zu den Trends aus den MOKE-Messungen, siehe Abbildung 6.6. Dieser Unterschied kann durch den Beitrag der Magnetisierungsdifferenz  $\delta m$  entstehen, siehe Formel (7.11). Für  $d = 1$  nm steigt zwar die Entmagnetisierung, aber gleichzeitig vergrößert sich die Differenz  $\delta m$  und überkompensiert die stärkere Entmagnetisierung. Das führt dazu, dass  $\Delta_{\text{odd}}$  nicht so stark fällt. Für diese beiden Schichtdicken ist  $\text{Int}(d) > 1$ , daraus folgt  $\delta m > 0$ , da ansonsten  $\Delta_{\text{odd}}$  stärker fallen würde. Dieser Zusammenhang wird weiter unten noch ausführlich diskutiert.

Für  $d = 0,5; 1$  nm werden die transienten Messungen nicht durch eine Kontamination der Probenoberfläche mit Restgasmolekülen beeinflusst, der zeitliche Verlauf von  $\Delta_{\text{odd}}$  ist unabhängig vom Probenalter. Jedoch wird der magnetische Kontrast  $\delta_{\text{SHG}}$  durch die Kontamination verändert, für die beiden Probendicken sieht man einen deutlichen Anstieg von  $\delta_{\text{SHG}}$  mit dem Probenalter, siehe Nebenbilder in Abbildung 7.6. Durch die Restgasmoleküle wird die elektronische Struktur verändert, dies kann mit  $\delta_{\text{SHG}}$  detektiert werden, siehe Kapitel 7.1.1.

Die Proben mit einer mittleren Schichtdicke  $d = 2; 4$  nm zeigen kurz nach der Präparation der Proben ein unerwartetes Verhalten von  $\Delta_{\text{odd}}$ , siehe Abbildung 7.7 (schwarze Kurven). Nach der Anregung mit dem Pumpimpuls steigt  $\Delta_{\text{odd}}$  einige zehn Femtosekunden stark um 10-20% an und regeneriert sich anschließend wieder. Die Regeneration findet dabei in zwei Zeitschritten statt, einem in einigen hundert Femtosekunden und einem zweiten von einigen Pikosekunden. Zwischen diesen zwei Regenerationsschritten steigt  $\Delta_{\text{odd}}$  für einige zehn Femtosekunden wieder an und es bildet sich ein lokales Minimum.

Anders als für  $d = 0,5; 1$  nm verursacht die Kontamination der Oberfläche mit Restgasmolekülen eine Modifikation von  $\Delta_{\text{odd}}$  für  $d = 2; 4$  nm. In Abbildung 7.7 ist  $\Delta_{\text{odd}}$  für verschiedene Probenalter dargestellt. Ein Maß für die Kontamination ist durch den

magnetischen Kontrast  $\delta_{\text{SHG}}$  gegeben, welcher mit dem Alter der Probe ansteigt, siehe Nebenbilder. Durch die Kontamination verringert sich die Stärke des Anstieges von  $\Delta_{\text{odd}}$  und die Breite des lokalen Minimums zwischen den Regenerationsschritten wird größer. Für  $d = 2 \text{ nm}$  fällt  $\Delta_{\text{odd}}$  nach dem ersten Anstieg unter dem Gleichgewichtswert für sehr alte Proben mit stark kontaminierten Oberflächen. Für die Probe mit  $d = 4 \text{ nm}$  ist dies nicht zu beobachten.

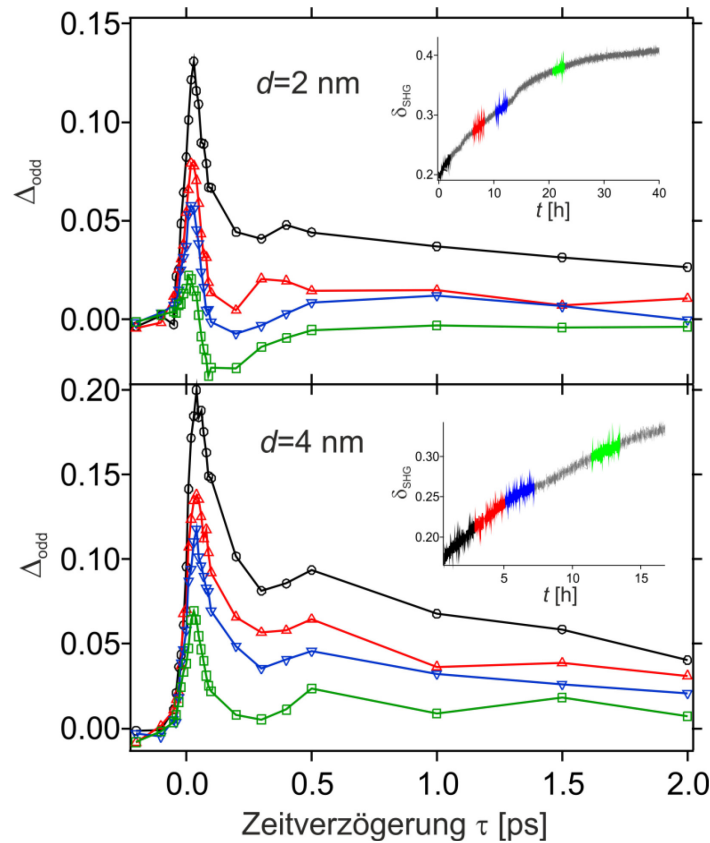


Abbildung 7.7: **Transienter Verlauf von  $\Delta_{\text{odd}}$  für mittlere Schichtdicken.** (oben)  $d = 2 \text{ nm}$  (unten)  $d = 4 \text{ nm}$ . Durch Interferenzeffekte der Magnetisierungsdynamiken beider Grenzflächen im System steigt  $\Delta_{\text{odd}}$  nach der Anregung. Der transiente Verlauf ist abhängig von der Oberflächenkontamination. Die unterschiedlichen Verläufe können durch den magnetischen Kontrast (Nebenbilder) unterschiedlichen Kontaminationen zugeordnet werden. Schwarze Kreise sind Daten, aufgenommen von einer frisch präparierten Probe, rote Dreiecke, blaue Dreiecke und grüne Quadrate entsprechend Daten der Probe bei längeren Zeiten nach der Probenpräparation.

Der zentrale Punkt, um den Anstieg von  $\Delta_{\text{odd}}(\tau)$  zu erklären, ist die Interferenz der beiden Grenzflächendynamik. Um einen Anstieg von  $\Delta_{\text{odd}}$  zu erreichen, muss der zweite Term in Formel (7.11) positiv sein und den ersten Teil deutlich kompensieren, dies kann gut mit der Funktion  $\text{Int}(d)$  erklärt werden. In diesem Probendickenbereich hat  $\text{Int}(d)$  sehr große Werte, siehe Abbildung 7.5. Daraus folgt, dass  $\Delta_{\text{odd}}$  sehr sensitiv auf eine Differenz der Magnetisierung  $\delta m$  reagiert. Für die frisch präparierten Proben ist  $\Delta_{\text{odd}}$  für alle Verzögerungszeiten größer Null, wodurch auch  $\delta m > 0$  größer Null sein muss. Der erste starke Anstieg von  $\Delta_{\text{odd}}$  nach der Anregung lässt auf ein besonders stark ausgeprägtes Profil schließen.

Die zeitaufgelösten Messungen der SH geben neuen Einblick in die Magnetisierungsdynamik und erweitern damit die MOKE-Messungen aus Kapitel 6. Für größere Schichtdicken  $d \geq 10 \text{ nm}$  wurde eine verstärkte Entmagnetisierung der Grenzfläche durch die Theorie vorhergesagt und mit dem Kerreffekt gemessen, siehe Kapitel 3 und 6.2.1. Dieser Effekt stammt von einem Beitrag in der Magnetisierungsdynamik, der durch spinpolarisiertem Transport entsteht. Für dünnere Schichtdicken konnte hier rüber keine Aussagen gemacht werden, da die Signale durch einen Effekt, das sogenannte kohärente Artefakt, überlagert sind. Durch die zeitaufgelösten SH-Messungen konnte jetzt aber gezeigt werden, dass  $\delta m > 0$  für  $d \leq 4 \text{ nm}$  für alle Verzögerungszeiten ist, d.h. die Oberfläche<sub>Vac/Co</sub> entmagnetisiert stärker als die Grenzfläche<sub>Co/Cu</sub>, siehe oben. Weiterhin zeigt das transiente Verhalten für  $\Delta_{\text{odd}}$  eine starke Variation bis  $\tau \approx 100 - 200 \text{ fs}$ , welche auf eine starke Magnetisierungsdynamik schließen lässt, siehe Abbildung 7.7. In diesem Zeitbereich ist das elektronische System nicht im thermischem Gleichgewicht und Transporteeffekte dominieren die Dynamik. Dieses Verhalten ist mit der Theorie vereinbar, da keine klare Aussage für Schichtdicken in Bereich der mittleren freien Weglänge, einige wenige Nanometer, gegeben werden konnte, siehe Kapitel 3.2. Daraus wird folgendes geschlossen:

**Für Probendicken  $d \leq 4 \text{ nm}$  entmagnetisiert die Oberfläche stärker als die Grenzfläche für alle Verzögerungszeiten. Während das elektronische System im Nichtgleichgewicht ist, wird die Dynamik sehr wahrscheinlich durch Transporteeffekte dominiert.**

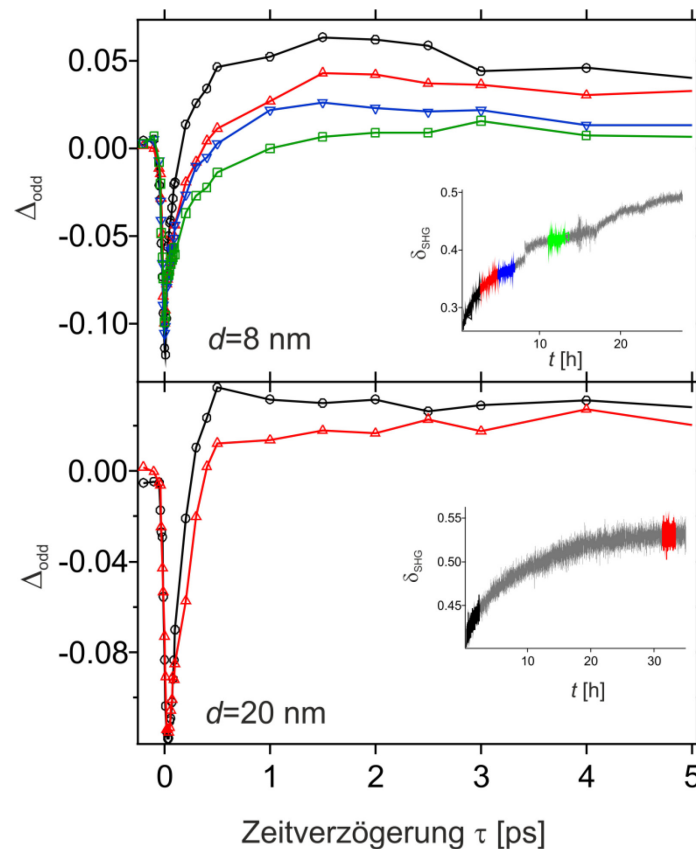


Abbildung 7.8: **Transienter Verlauf von  $\Delta_{\text{odd}}$  für dicke Schichtdicken.** (oben)  $d = 8 \text{ nm}$  (unten)  $d = 20 \text{ nm}$ . Die Ursache des Anstiegs von  $\Delta_{\text{odd}}$  über den Gleichgewichtswert ist unklar. Als Ursache könnten Interferenzeffekte der Magnetisierungsdynamik beider Grenzflächen im System oder eine Variation der optischen Parameter verantwortlich sein. Der transiente Verlauf ist abhängig von der Oberflächenkontamination. Die unterschiedlichen Verläufe können durch den magnetischen Kontrast (Nebenbilder) unterschiedlichen Kontaminationen zugeordnet werden. Schwarze Kreise sind Daten, aufgenommen von einer frisch präparierten Probe, rote Dreiecke, blaue Dreiecke und grüne Quadrate entsprechend Daten der Probe bei längeren Zeiten nach der Probenpräparation.

Das transiente Verhalten für dicke Proben  $d = 8; 20 \text{ nm}$  unterscheidet sich von den Proben mit  $d < 8 \text{ nm}$ , siehe Abbildung 7.8. Nach der Anregung fällt das Signal  $\Delta_{\text{odd}}$  für einige zehn Femtosekunden und steigt anschließend über dem Gleichgewichtswert an. Der maximal erreichte Wert von  $\Delta_{\text{odd}}$  hängt dabei von der Kontamination der Probe ab. Für  $d = 8 \text{ nm}$  ist

der Anstieg oberhalb des Gleichgewichtswertes für stark kontaminierte Proben nicht mehr zu erkennen. Dieses ist für die Probe mit  $d = 20$  nm nicht zu beobachten,  $\Delta_{\text{odd}}$  überschreitet für alle Probenkontaminationen den Gleichgewichtswert. Die Variation mit der Kontamination ist für  $d = 20$  nm geringer als für  $d = 8$  nm.

Die Interpretation für diese Probendicken ist nicht ganz eindeutig. Die Interferenzfunktion hat für  $d = 8$  nm einen Wert von  $\text{Int}(8 \text{ nm}) = -0,33$ , dies sollte aber aufgrund des negativen Vorzeichens eine Reduktion von  $\Delta_{\text{odd}}$  für längere Verzögerungszeiten von  $\tau > 1$  ps verursachen. Für diesen Verzögerungsbereich ist  $\delta m > 0$ , wie aus MOKE-Messungen hervorgeht, siehe Kapitel 6.2.1 und der Interferenzterm in Formel (7.11) müsste negativ sein. Ein möglicher Grund könnte die Ungenauigkeit der verwendeten Parameter sein. Die verwendeten Werte wurden einem Fit entnommen, der fehlerbehaftet ist. Durch leicht veränderte Werte können auch positive Werte für die Interferenzfunktion  $\text{Int}$  für  $d = 8$  nm bekommen werden, wodurch der Anstieg über dem Gleichgewichtswert entstehen kann, siehe Abbildung 7.5.

Für  $d = 20$  nm ist die Problematik noch weiter ausgeprägt. Für diese Probendicke ist  $\Delta_{\text{odd}}$  für Verzögerungszeiten  $\tau > 1$  ps ebenfalls positiv. Die Funktion  $\text{Int}(d)$  ist für beide verwendete Parameter negativ und der Wert ist sehr gering, daher sollte die Grenzflächendynamik kaum einen Einfluss haben, siehe Abbildung 7.5. Eventuell weichen die verwendeten Parameter zu weit von dem Tatsächlichen ab und der Interferenzterm ist positiv und größer als erwartet. In Kombination mit einer großen Differenz  $\delta m$ , welche in MOKE-Experimenten gemessen wurde, siehe Kapitel 6.2.1, könnte ein positiver Wert von  $\Delta_{\text{odd}}$  entstehen. Das sind nur Spekulationen, die anhand der vorliegenden Informationen nicht verifiziert werden können. Eine weitere Erklärung könnte eine Variation der optischen Parameter sein, welche aber auch nicht vollständig mit dem transienten Verlauf von  $\Delta_{\text{odd}}$  zusammenpasst. Die Variation von optischen Konstanten wird in Unterkapitel 7.2.1 diskutiert.

### 7.2.1. Variation der optischen Parameter

Wie im Fall der zeitaufgelösten Messungen kann eine Variation der optischen Parameter nicht ausgeschlossen werden und die Diskussion ist auf Grund der vielen Parameter sehr schwierig. Im Fall der SHG gehen die Tensorelemente von  $\chi$  (Formel (4.28)) von beiden Grenzflächen (Vac/Co und Co/Cu), und die Brechungsindizes in Kobalt für  $\lambda = 400$  &  $800$  nm während der Propagation in der Kobaltschicht ein. Weiterhin bestimmen die Brechungsindizes von Kobalt und Kupfer für  $\lambda = 800$  nm die Intensität der Fundamentalen an den Grenzflächen, mit denen die zweite Harmonische erzeugt wird. Dennoch gibt es einige Beobachtungen, die nur sehr schwer mit einer Variation erklärt werden können und somit diesen widersprechen. Wie im Fall der MOKE-Messungen wird im Fall der SHG Messungen anhand von transienten Verläufen die Variation diskutiert.

Das stärkste Argument gegen eine Variation ist die Langlebigkeit der Effekte. Für  $d = 2$ ;  $4$  nm ist  $\Delta_{\text{odd}}$ , für saubere Proben, bis zum Ende des Messzeitraums von  $\tau = 10$  ps durchgehend positiv. Eine Variation der optischen Konstante sollte maßgeblich durch State-Filling-Effekte oder eine heiße Elektronenverteilung [41-43] entstehen, mit welchen auf dieser Zeitskala nicht zu rechnen ist. Die Temperatur des elektronischen Systems nimmt stetig ab und damit sollte auch eine Variation verschwinden, siehe Abbildung 6.10.

Dieselbe Argumentation gilt auch für  $d = 8$ ;  $20$  nm, wobei  $\Delta_{\text{odd}}$  erst nach einigen hundert Femtosekunden positiv wird. Das würde bedeuten, dass die Variation sich nicht direkt nach dem Laserpuls aufbaut, sondern erst nach der Thermalisierung des elektronischen Systems, dies spricht komplett gegen State-Filling-Effekte.

## 8. Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die schichtdickenabhängige laserinduzierte Magnetisierungsdynamik in Kobaltschichten auf einem Kupfersubstrat Co/Cu(001) in einem Schichtdickenbereich von  $0,5 \leq d \leq 20 \text{ nm}$  mit Hilfe von magnetooptischen Methoden und theoretischen Überlegungen untersucht, siehe Kapitel 6 und 7. Besonderer Wert wurde dabei auf die Bestimmung der dominierenden Mechanismen und deren zeitliches Auftreten gelegt. Während das elektronische System nicht im thermischen Gleichgewicht ist, dominieren Transporteffekte die Spindynamik und mit der Thermalisierung des elektronischen Systems nehmen lokale Beiträge durch thermisch getriebene Spin-Flip-Streuung überhand, siehe Kapitel 6, wobei der Beitrag beider Mechanismen zur Magnetisierungsdynamik in derselben Größenordnung liegt.

Für die Analyse wurde der Einfluss der wirkenden Mechanismen auf die Magnetisierungsprofile untersucht. Die theoretische Betrachtung der Profile befindet sich in Kapitel 3. Die Überlegungen in diesem Kapitel ergeben fundamental unterschiedliche Magnetisierungsprofile für die beiden untersuchten Mechanismen, wodurch eine Unterscheidung möglich ist. Aufgrund der geringen Eindringtiefe ( $\delta_{\text{skin}} = 13 \text{ nm}$ ) der Laserpulse und Energie-/Wärmeleitung im System ergibt sich ein Magnetisierungsprofil für den thermisch getriebenen Spin-Flip, in dem oberflächennahe Bereiche stärker entmagnetisiert sind als Bereiche nahe der Grenzfläche zum Kupfersubstrat. Das Profil wird dabei noch durch die Einflüsse des Substrates weiter verstärkt. Das Substrat dient als Energiesenke und ermöglicht einen schnellen Abtransport der Energie, wodurch ein starker Gradient in der Temperaturverteilung entsteht, dem die Magnetisierung folgt.

Durch spinpolarisierten Transport hingegen können auch Bereiche nahe des Substrats stärker entmagnetisiert werden als Bereiche in der Nähe der Oberfläche. Zu diesem Profil können mehrere Effekte führen. Erstens, ein starker Gradient in der Spinpolarisation an der

Grenzfläche zum Substrat, wodurch Magnetisierung an der Grenzfläche abtransportiert wird. Zweitens, sekundäre Elektronen, die im Substrat erzeugt werden und zurück in die ferromagnetische Schicht streuen. Diese Elektronen können zu einer erhöhten Akkumulation von Minoritätselektronen, aufgrund von unterschiedlichen mittleren freien Weglängen, an der Grenzfläche führen [6, 9]. Ein wichtiger Punkt bei dieser Betrachtung ist die untersuchte Schichtdicke: Im Bereich der mittleren freien Weglänge (einige Nanometer) können sich die Verhältnisse ändern und die Form des Magnetisierungsprofils stark beeinflussen.

Zur Bestimmung der zeitabhängigen Dominanz der unterschiedlichen Mechanismen, wurde die magnetooptische Antwort des Systems nach der Anregung gemessen und eine Profilanalyse durchgeführt. Es wurde die Variation der Kerrrotation  $\Delta\theta_n(\tau)$ , der Kerrelliptizität  $\Delta\varepsilon_n(\tau)$  und der des magnetischen Kontrastes  $\Delta\delta_{k,n}(\tau)$  gemessen. Die Observablen weisen unterschiedliche Tiefensensitivitäten auf, dies ermöglicht es, durch einen Vergleich der relativen Antworten Rückschlüsse über die Magnetisierungsprofile zu erhalten, siehe Kapitel 4.4. Diese Messungen zeigten eine stärkere Entmagnetisierung der Grenzfläche im Vergleich zur Oberfläche für Proben mit  $d \geq 10$  nm nach der Anregung. Nach  $\tau \approx 100 - 200$  fs stellte sich eine stärkere Entmagnetisierung der Oberflächen ein. Für dünnere Proben war das Signal von dem sogenannten kohärenten Artefakt überlagert und es konnte keine genauere Aussage gemacht werden. Dieser Schichtdickenbereich wurde durch grenzflächensensitive Messungen der zweiten Harmonischen ergänzt, die gezeigt haben, dass die stärkere Entmagnetisierung der Grenzfläche im Vergleich zur Oberfläche für  $d \leq 4$  nm aufgehoben ist. Dazu wurde die Interferenz der Signale beider Grenzflächen, Vac/Co und Co/Cu, analysiert.

Die Messungen wurden, zusätzlich zur Bekräftigung der Interpretation, mit schichtdickenabhängigen Simulationen ergänzt, wobei die Magnetisierungsdynamik mit einem erweiterten M3TM Modell und einem spinpolarisierten Diffusionsmodell simuliert und das magnetooptische Signal berechnet wurden, siehe Kapitel 6.3. Zur Reproduktion einer Vielzahl der experimentellen Ergebnisse mussten beide Modelle kombiniert werden, mit einem Modell alleine konnten nur einzelne Beobachtungen wiedergegeben werden.



Diese Analyse der Unterschiede der magnetooptischen Observablen weicht grundlegend von vorherigen Veröffentlichungen ab [41-43], wobei die Unterschiede durch eine Variation der optischen Parameter erklärt wurden. Eine solche Variation kann in dieser Arbeit nicht ausgeschlossen werden, dennoch hat eine ausführliche Diskussion in Kapitel 6.4 und 7.2.1 gezeigt, dass die Magnetisierungsprofile in Kombination mit den Tiefensensitivitäten den wesentlichen Beitrag zum transienten magnetooptischen Signal liefern.

Zusammenfassend wurde in dieser Arbeit eine neue Analysemethode entwickelt, die zum Verständnis der Mechanismen in der laserinduzierten Spindynamik beiträgt und helfen kann, diese weiter auszubauen. In weiterführenden Experimenten wäre eine Untersuchung der Einflüsse einer Variation der optischen Parameter sinnvoll. Denkbar hierfür wären ellipsometrische Messungen, die eine Bestimmung des Real- und Imaginärteiles des komplexen Brechungsindex erlauben. Auch Experimente in Transmission wären sehr interessant, da hierdurch neue Freiheitsgrade erzielt werden könnten. Diese Art von Messungen wurden in früheren Arbeiten [41-43] schon gemacht, aber in der Analyse wurden nicht die unterschiedlichen Tiefensensitivitäten berücksichtigt.

All diese Messungen hängen sehr sensitiv von den MOKE-Sensitivitäten ab, welche von den optischen Parametern abhängt. Inhomogenitäten innerhalb der Probe, bedingt durch das Wachstum, können Einflüsse auf die Parameter ausüben und sollten deswegen untersucht werden. In dieser Arbeit wurde das schichtdickenabhängige statische Signal verwendet, um generelle Informationen über das Verhalten der MOKE-Sensitivität zu erhalten, siehe Kapitel 6.1. In weiterführenden Arbeiten könnte das statische Signal während der Herstellung gemessen werden, wodurch zusätzliche Information zur Verfügung stehen würden.



# A. Transiente Reflektion

Zusätzlich zu den transienten Messungen der Magnetooptik (Kapitel 6 und 7) wurde die Reflektion nach der Anregung mit den Laserpulsen gemessen, welche in diesem Kapitel vorgestellt wird. Für alle Proben der transversalen und longitudinalen Geometrien wurde eine eingestrahlte Fluenz von  $F = 6 \text{ mJ/cm}^2$  verwendet, wobei die Pumppulse in der transversalen Geometrie s-polarisiert und in der longitudinalen Geometrie p-polarisiert waren, wodurch unterschiedliche Fluenzen absorbiert wurden, siehe Abbildung 6.2. Das kohärente Artefakt hatte diese Polarisationswahl erforderlich gemacht, siehe Kapitel 5.1.1. Durch diese Unterschiede ist ein direkter Vergleich der beiden Messreihen nur bedingt möglich, dennoch liefert die Kombination einen guten Überblick über die wirkenden Mechanismen. Bei der Interpretation der Ergebnisse wird die Probe  $d = 12,5 \text{ nm}$  nicht berücksichtigt, sondern später separat betrachtet.

In Abbildung A1 sind die normierten Variationen der Reflektion  $\Delta R_n(\tau) = (R(\tau) - R_0)/R_0$  der transversalen und longitudinalen Geometrie dargestellt, wobei  $R(\tau)$  die Reflektion nach einer Verzögerungszeit  $\tau$  nach der Anregung und  $R_0$  die ungestörte Reflektion ist. In der Abbildung sind zwei konkurrierende transiente Beiträge, einen Fallenden und einen Steigenden, zu beobachten. Diese zwei konkurrierenden Beiträge sind sowohl in der transversalen als auch in der longitudinalen Geometrie zu erkennen, jedoch können die Effekte aufgrund der Schichtdickenwahl für die jeweiligen Messungen besser separiert werden und es wird jeweils nur eine Geometrie verwendet, um einen Beitrag zu beschreiben. Der fallende Beitrag wird durch die transversale Geometrie und der steigende Beitrag durch die longitudinale Geometrie beschreiben.

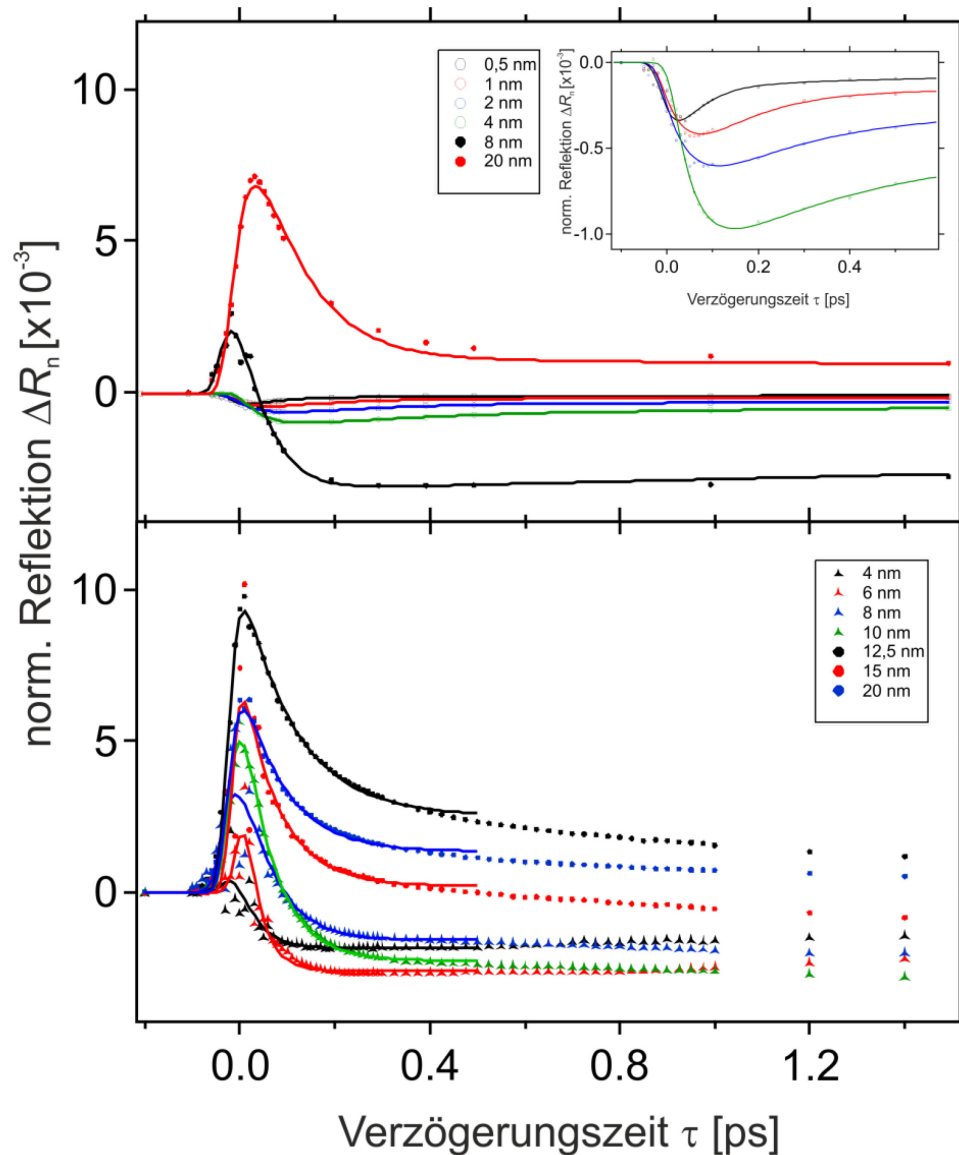


Abbildung A.1: **Schichtdickenabhängige transiente Reflektion.** Transiente Reflektion  $\Delta R_n(\tau)$  für Co/Cu(001) für verschiedene Schichtdicken in der transversalen (oben) und longitudinalen Geometrie (unten). Es sind zwei konkurrierende Beiträge, ein Abfallender, verursacht durch das Kupfersubstrat und ein Steigender, verursacht durch die Kobaltschicht, zu beobachten. Messpunkte sind durch Symbole (siehe Legende) und Fits nach Formel (6.2) durch Kurven dargestellt. (Nebenbild)  $\Delta R_n(\tau)$  für  $d \leq 4$  nm in der transversalen Geometrie für  $\tau \leq 500$  fs.

---

Für dünnere Schichten  $d \leq 4$  nm zeigt die Reflektion nach der Laseranregung eine Reduktion, die sich mit steigender Schichtdicke immer weiter ausprägt. Der Verzögerungszeitpunkt des minimalen Signals verschiebt sich dabei zu immer späteren Zeiten. Aufgrund des gewählten Schichtdickenbereichs ist dieser Effekt in der transversalen Geometrie gut ausgeprägt und die Position der minimalen Reflektion wird für diese Geometrie verwendet, siehe Abbildung A.2. Dazu wurden die Daten mit einer dreifachen exponentiellen Funktion gefittet, siehe Formel (6.2) und die Minimumposition aus den Fits bestimmt. Die Fits konvergieren nicht und aus den Fitparametern konnten keine weiteren Informationen gewonnen werden. Jedoch geben die Fits den transienten Verlauf wieder und können zur Bestimmung der Minimumposition verwendet werden, siehe Abbildung A.1.

Ab  $d = 6$  nm baut sich ein konkurrierendes, transientes Verhalten um den Verzögerungszeitpunkt  $\tau = 0$  auf. Die Reflektion steigt mit Eintreffen des Laserpulses an und fällt anschließend unter den Gleichgewichtswert, siehe Abbildung A.1. Mit wachsender Schichtdicke wird der anfängliche Anstieg immer größer und die anschließende Reduktion unterhalb des Gleichgewichtswertes wird geringer. Für  $d = 20$  nm ist die Variation der Reflektion durchgehend positiv. Weiterhin wird bei zunehmender Schichtdicke eine verlangsamte Regenerierung beobachtet. Dieser Effekt wird gut durch die Messungen der longitudinalen Geometrie repräsentiert und der maximale Anstieg aus diesen ermittelt, siehe Abbildung A.3. Es wurde das gleiche Vorgehen wie im transversalen Fall zur Bestimmung durchgeführt

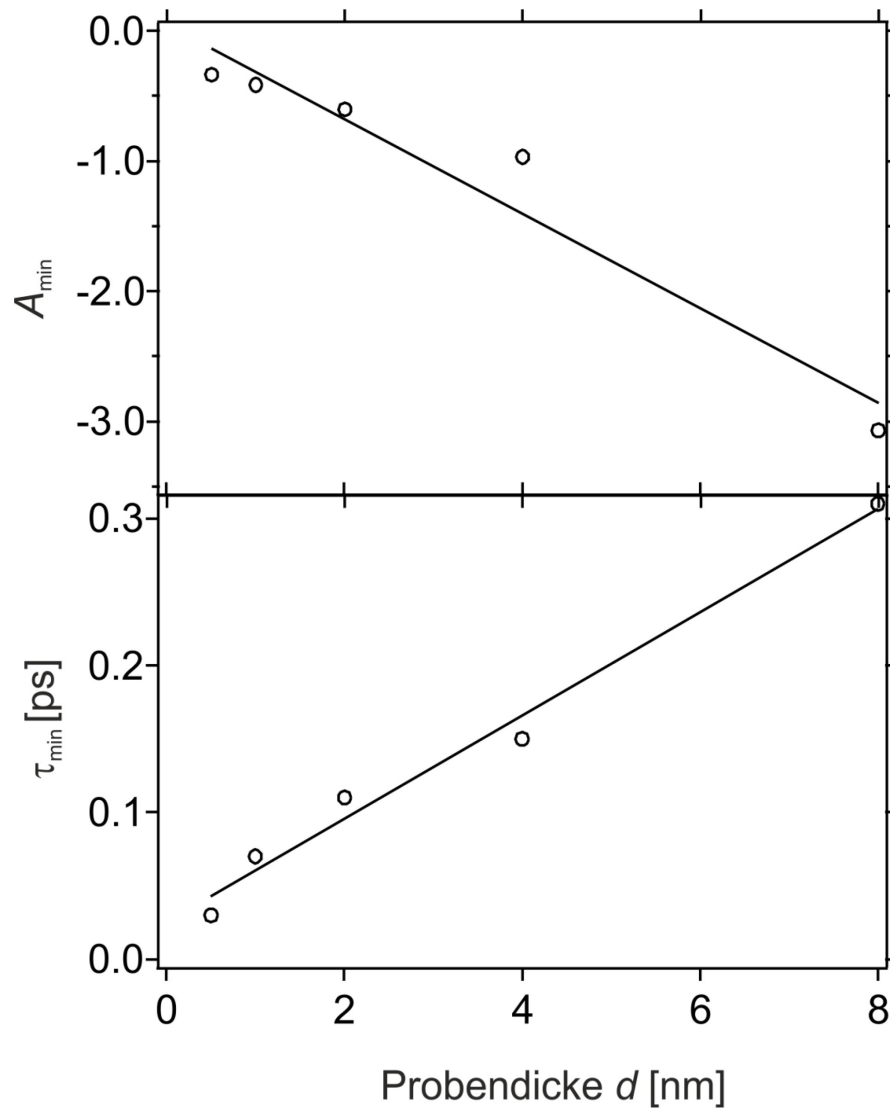


Abbildung A.2: **Minimumposition der transienten Reflektion.** Amplitude  $A_{\min}$  (Oben) und Verzögerungzeitpunkt  $\tau_{\min}$  der minimalen Reflektion für verschiedene Schichtdicken in der transversalen Geometrie. Mit wachsender Schichtdicke wird die Variation der Reflektion stärker und verschiebt sich zu späteren Verzögerungszeiten.

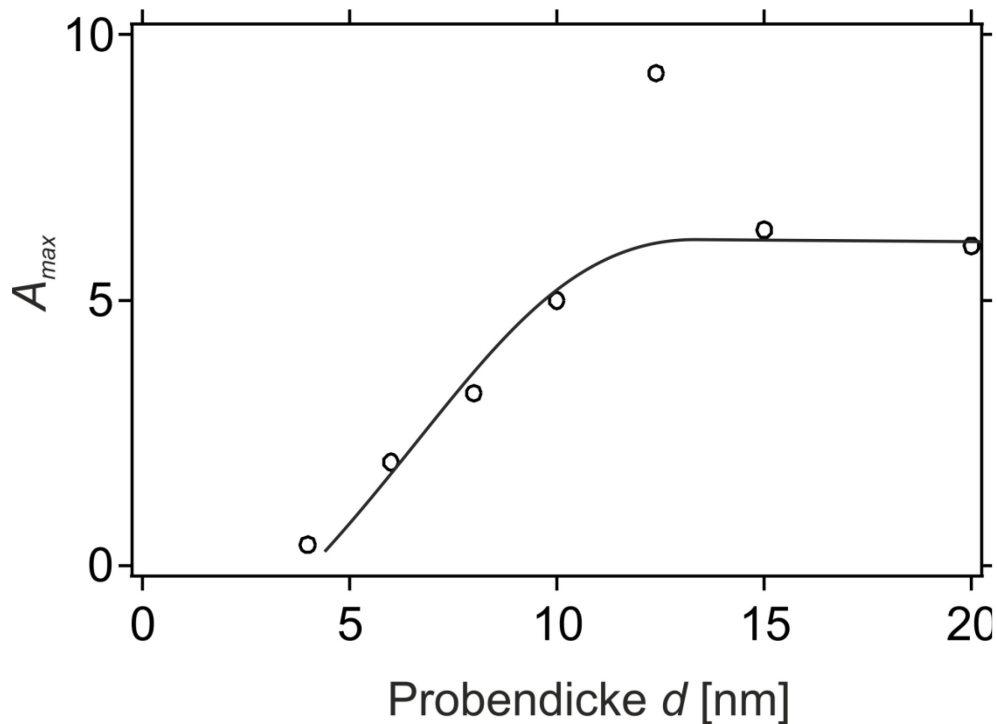


Abbildung A.3: **Maximale transiente Reflektionsänderung.** Maximale Änderung der Reflektion für verschiedene Schichtdicken in der longitudinalen Geometrie.

Dieses transiente Verhalten legt nahe, dass die Reduktion der Reflektion nach der Anregung vom Kupfersubstrat und der Anstieg von der Kobaltschicht verursacht wird. Für Bulkmaterial von Kupfer und Kobalt wurde dieses transiente Verhalten, für die verwendete Wellenlänge von  $\lambda = 800$  nm, experimentell beobachtet [18, 41], wodurch diese Interpretation unterstützt wird. In den schichtdickenabhängigen Messungen dieser Arbeit können diese Beiträge untereinander konkurrieren und ein kombiniertes Verhalten ergeben. Für dünne Schichten reicht der Anstieg der Reflektion von der Kobaltschicht nicht aus, um die Reduktion durch das Kupfersubstrat zu kompensieren. Bemerkenswert hierbei ist die zunehmende Reduktion der Reflektion mit der Schichtdicke, siehe Abbildung A.2. Aufgrund der Dämpfung in der Kobaltschicht wird weniger Energie im Kupfersubstrat absorbiert und eine geringere Änderung der Reflektion würde erwartet werden. Dieser Effekt wird aber anscheinend durch

die vermehrte Streuung von Sekundärelektronen kompensiert. Mit wachsender Kobaltschicht wird mehr Energie in dieser absorbiert, siehe Abbildung 6.2, und damit mehr Elektronen angeregt. Die angeregten Elektronen können in das Kupfersubstrat propagieren und Sekundärelektronen erzeugen, die zu einem Anstieg der Temperatur führen. Dieser Effekt erklärt auch das zeitliche Verschieben der minimalen Reflektion zu späteren Verzögerungszeiten mit der Schichtdicke, siehe Abbildung A.2. Mit wachsender Schichtdicke wird die Propagationsdauer im Kobalt länger und die maximale Reflektionsänderung findet später statt. Die längere Propagationszeit findet sich auch in der größeren Regenerierungszeit für dicke Schichten wieder. Die Energie braucht länger, um ins Kupfersubstrat abzufließen. Dieser Prozess wird auch in der Magnetisierungsdynamik beobachtet und ausführlich in Kapitel 6 beschrieben.

Die Messdaten in Abbildung A.1 zeigen eine klare Systematik mit der Schichtdicke auf. Lediglich für  $d = 12,5$  nm wird diese Systematik gebrochen. Die Probe zeigt das Verhalten einer viel dickeren Schicht. Die maximale Änderung der Reflektion ist stärker als für  $d = 20$  nm und die Signaländerung ist durchgehend positiv. Weiterhin regeneriert die Probe langsamer als die  $d = 20$  nm Probe, siehe Abbildung A.1. Die Probendicke wird auf  $d > 20$  nm geschätzt. Diese Ungenauigkeit kann durch die unterschiedliche Präparation der Probe im Vergleich zu anderen Proben begründet werden, siehe Kapitel 5. Es wurde ein anderer Verdampfer verwendet. Weiterhin zeigen statische und zeitliche Kerrwinkelmessungen, siehe Abbildung 6.1 und Abbildung 6.6, ebenfalls eine Abweichung von der Systematik, die diese Schlussfolgerung unterstützt.



# Literaturverzeichnis

1. H.R. Paul und M.K. Eric, *On the genesis of the Earth's magnetism*. Reports on Progress in Physics, 2013. **76**(9): p. 096801.
2. E. Beaupaire et al., *Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel*. Physical Review Letters, 1996. **76**(22): p. 4250-4253.
3. J. Stöhr und H.-C. Siegmann, *Magnetism, From fundamentals to nanoscale dynamics*. . Springer.2006.
4. I. Tudosa et al., *The ultimate speed of magnetic switching in granular recording media*. Nature, 2004. **428**(6985): p. 831-833.
5. I. Radu et al., *Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins*. Nature, 2011. **472**(7342): p. 205-208.
6. M. Battiato, K. Carva und P.M. Oppeneer, *Superdiffusive Spin Transport as a Mechanism of Ultrafast Demagnetization*. Physical Review Letters, 2010. **105**(2).
7. A. Melnikov et al., *Ultrafast Transport of Laser-Excited Spin-Polarized Carriers in Au/Fe/MgO(001)*. Physical Review Letters, 2011. **107**(7): p. 076601.
8. D. Rudolf et al., *Ultrafast magnetization enhancement in metallic multilayers driven by superdiffusive spin current*. Nature Communications, 2012. **3**: p. 1037.
9. M. Battiato, Superdiffusive Spin Transport and Ultrafast Magnetization Dynamics, Femtosecond spin transport as the route to ultrafast spintronics, Dissertation, Universität Uppsala, Uppsala: Acta Universitatis Upsaliensis, 2013
10. M. Battiato, K. Carva und P.M. Oppeneer, *Theory of laser-induced ultrafast superdiffusive spin transport in layered heterostructures*. Physical Review B, 2012. **86**(2).
11. B. Koopmans et al., *Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization*. Nature Mater, 2010. **9**(3): p. 259-65.

12. G. Traeger, L. Wenzel und A. Hubert, *Computer experiments on the information depth and the figure of merit in magnetooptics*. Physica Status Solidi a-Applied Research, 1992. **131**(1): p. 201-227.
13. C. Rullière, *Femtosecond laser pulses- Principles and experiments*. Springer.2005.
14. A. Eschenlohr et al., *Role of spin-lattice coupling in the ultrafast demagnetization of Gd<sub>1-x</sub>Tb<sub>x</sub> alloys*. Physical Review B, 2014. **89**(21).
15. C. Streubuehr et al., *Comparing ultrafast surface and bulk heating using time-resolved electron diffraction*. Applied Physics Letters, 2014. **104**(16).
16. M. Sandhofer et al., *Unoccupied electronic structure and relaxation dynamics of Pb/Si(111)*. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 2014. **195**: p. 278-284.
17. H.S. Rhie, H. Dürr und W. Eberhardt, *Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Ni/W(110) Films*. Physical Review Letters, 2003. **90**(24).
18. J. Hohlfeld et al., *Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals*. Chemical Physics, 2000. **251**(1-3): p. 237-258.
19. D. Denzler, Untersuchungen zur Ultrakurzzeitdynamik photostimulierter Oberflächenreaktionen und der Energierelaxation in Metallen, Diplomarbeit, Berlin: Freie Universität Berlin <http://www.fhi-berlin.mpg.de/~wolf/femtoweb/publications/thesis.php,1999>
20. A. Kirilyuk, A.V. Kimel und T. Rasing, *Ultrafast optical manipulation of magnetic order*. Reviews of Modern Physics, 2010. **82**(3): p. 2731-2784.
21. A. Vaterlaus et al., *Spin-lattice relaxation in ferromagnets studied by time-resolved spin-polarized photoemission*. Physical Review B, 1992. **46**(9): p. 5280-5286.
22. A. Vaterlaus, T. Beutler und F. Meier, *Spin-lattice relaxation time of ferromagnetic gadolinium determined with time-resolved spin-polarized photoemission*. Physical Review Letters, 1991. **67**(23): p. 3314-3317.
23. W. Hübner und K.H. Bennemann, *Simple theory for spin-lattice relaxation in metallic rare-earth ferromagnets*. Physical Review B, 1996. **53**(6): p. 3422-3427.
24. U. Atxitia et al., *Evidence for thermal mechanisms in laser-induced femtosecond spin dynamics*. Physical Review B, 2010. **81**(17): p. 174401.
25. U. Atxitia und O. Chubykalo-Fesenko, *Ultrafast magnetization dynamics rates within the Landau-Lifshitz-Bloch model*. Physical Review B, 2011. **84**(14): p. 144414.
26. J.-Y. Bigot, M. Vomir und E. Beaurepaire, *Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses*. Nature Physics, 2009. **5**(7): p. 515-520.

- 
27. E. Carpena et al., *Dynamics of electron-magnon interaction and ultrafast demagnetization in thin iron films*. Physical Review B, 2008. **78**(17): p. 174422.
  28. M. Cinchetti et al., *Spin-Flip Processes and Ultrafast Magnetization Dynamics in Co: Unifying the Microscopic and Macroscopic View of Femtosecond Magnetism*. Physical Review Letters, 2006. **97**(17): p. 177201.
  29. S. Essert und H.C. Schneider, *Electron-phonon scattering dynamics in ferromagnetic metals and their influence on ultrafast demagnetization processes*. Physical Review B, 2011. **84**(22): p. 224405.
  30. B. Koopmans et al., *Unifying Ultrafast Magnetization Dynamics*. Physical Review Letters, 2005. **95**(26): p. 267207.
  31. M. Krauß et al., *Ultrafast demagnetization of ferromagnetic transition metals: The role of the Coulomb interaction*. Physical Review B, 2009. **80**(18): p. 180407.
  32. G. Malinowski et al., *Control of speed and efficiency of ultrafast demagnetization by direct transfer of spin angular momentum*. Nature Physics, 2008. **4**(11): p. 855-858.
  33. B.Y. Mueller et al., *Driving force of ultrafast magnetization dynamics*. New Journal of Physics, 2011. **13**(12): p. 123010.
  34. D. Steiauf und M. Fähnle, *Elliott-Yafet mechanism and the discussion of femtosecond magnetization dynamics*. Physical Review B, 2009. **79**(14): p. 140401.
  35. D. Steil et al., *Band-Structure-Dependent Demagnetization in the Heusler Alloy  $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$* . Physical Review Letters, 2010. **105**(21): p. 217202.
  36. M.S. Si und G.P. Zhang, *Resolving photon-shortage mystery in femtosecond magnetism*. Journal of Physics: Condensed Matter, 2010. **22**(7): p. 076005.
  37. A. Eschenlohr et al., *Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization*. Nature Materials, 2013. **12**(4): p. 332-336.
  38. C. Stamm et al., *Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel*. Nature Materials, 2007. **6**(10): p. 740-743.
  39. M. Wietstruk et al., *Hot-Electron-Driven Enhancement of Spin-Lattice Coupling in Gd and Tb 4f Ferromagnets Observed by Femtosecond X-Ray Magnetic Circular Dichroism*. Physical Review Letters, 2011. **106**(12): p. 127401.
  40. K. Carva, M. Battiato und P.M. Oppeneer, *Ab Initio Investigation of the Elliott-Yafet Electron-Phonon Mechanism in Laser-Induced Ultrafast Demagnetization*. Physical Review Letters, 2011. **107**(20): p. 207201.
  41. A. Comin et al., *Femtosecond dynamics of Co thin films on Si support*. Solid State Communications, 2004. **129**(4): p. 227-231.

42. L. Guidoni, E. Beaurepaire und J.-Y. Bigot, *Magneto-optics in the Ultrafast Regime: Thermalization of Spin Populations in Ferromagnetic Films*. Physical Review Letters, 2002. **89**(1): p. 017401.
43. B. Koopmans et al., *Ultrafast Magneto-Optics in Nickel: Magnetism or Optics?* Physical Review Letters, 2000. **85**(4): p. 844-847.
44. M. van Kampen, *Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic metals*, Dissertation, Technische Universität Eindhoven, 2003
45. A. Scholl et al., *Ultrafast Spin Dynamics of Ferromagnetic Thin Films Observed by fs Spin-Resolved Two-Photon Photoemission*. Physical Review Letters, 1997. **79**(25): p. 5146-5149.
46. A. Weber et al., *Ultrafast demagnetization dynamics of thin Fe/W(110) films: Comparison of time- and spin-resolved photoemission with time-resolved magneto-optic experiments*. Physical Review B, 2011. **84**(13): p. 132412.
47. C. Stamm et al., *Femtosecond x-ray absorption spectroscopy of spin and orbital angular momentum in photoexcited Ni films during ultrafast demagnetization*. Physical Review B, 2010. **81**(10): p. 104425.
48. A. Melnikov et al., *Coherent Optical Phonons and Parametrically Coupled Magnons Induced by Femtosecond Laser Excitation of the Gd(0001) Surface*. Physical Review Letters, 2003. **91**(22): p. 227403.
49. K. T. et al., *Terahertz spin current pulses controlled by magnetic heterostructures*. Nature Nanotechnology, 2013. **8**(4): p. 256-260.
50. A.J. Schellekens et al., *Exploring laser-induced interlayer spin transfer by an all-optical method*. Physical Review B, 2014. **90**(10): p. 104429.
51. A.J. Schellekens et al., *Investigating the contribution of superdiffusive transport to ultrafast demagnetization of ferromagnetic thin films*. Applied Physics Letters, 2013. **102**(25): p. 252408.
52. D.L. Windt, *IMD - Software for modeling the optical properties of multilayer films*. Computers in Physics, 1998. **12**(4): p. 360-370.
53. C.Y. Ho, R.W. Powell und P. E. Liley, *Thermal Conductivity of the Elements: A Comprehensive Review*. Physical and Chemical Reference Data, Supplement No.1, 1974. **3**.
54. A. Duvenbeck und A. Wucher, *Low-energy electronic excitation in atomic collision cascades: A nonlinear transport model*. Physical Review B, 2005. **72**(16): p. 165408.
55. A. Goris et al., *Role of Spin-Flip Exchange Scattering for Hot-Electron Lifetimes in Cobalt*. Physical Review Letters, 2011. **107**(2).

- 
56. J. Hohlfeld, Ultrafast Electron-, Lattice-, and Spin-Dynamics in Metals investigated by linear and nonlinear optical Techniques, Dissertation, Berlin: Freie Universität Berlin, Verlag für Wissenschaft und Forschung, Reihe: Akademische Abhandlung zur Physik, 1998
  57. D.R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 84th Edition*. Taylor & Francis. 2003.
  58. A. Tari, *The Specific Heat of Matter at Low Temperatures*. Imperial College Press. 2003.
  59. C.L. Yaws, *The Yaws Handbook of Thermodynamic Properties for Hydrocarbons and Chemicals*. Gulf Pub. 2006.
  60. M.E. Wieser und T.B. Coplen, *Atomic weights of the elements 2009 (IUPAC Technical Report)*. Pure and Applied Chemistry, 2011. **83**(2): p. 359-396.
  61. J. Wieczorek et al., *Competition of spin currents and spin-flip scattering in ultrafast magnetization dynamics of Co/Cu(001) analyzed by complex time-resolved MOKE*. arXiv:1503.01979, 2015.
  62. R.M.A. Azzam und N.M. Bashara, *Ellipsometry and polarized light 2*. PRINT. ed.: NORTH-HOLLAND PUBL. CO. 1979.
  63. M. Born und E. Wolf, *Principles of optics- Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light. 7., (expanded) ed., 4. print. ed.*: Cambridge Univ. Press. 2006.
  64. J. Hamrle, Magneto-optical determination of the in-depth magnetization profile in magnetic multilayers, Dissertation, Universität Paris 2003
  65. J. Zak et al., *Magneto-optics of multilayers with arbitrary magnetization direction*. Physical Review B, 1991. **43**(8): p. 6423-6429.
  66. E.D. Palik, *Handbook of optical constants of solids. 2. [Nachdr.] ed.*: Acad. Press. 2003.
  67. H. Li und B.P. Tonner, *Structure and growth mode of metastable fcc cobalt ultrathin films on Cu(001) as determined by angle-resolved x-ray photoemission scattering*. Surface Science, 1990. **237**(1-3): p. 141-152.
  68. J.J.d. Miguel et al., *Influence of the growth conditions on the magnetic properties of fcc cobalt films: from monolayers to superlattices*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1991. **93**(0): p. 1-9.
  69. E. Navas et al., *Crystallography of epitaxial face centered tetragonal Co/Cu(100) by low energy electron diffraction*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1993. **121**(1-3): p. 65-68.
  70. R.M. Osgood et al., *Magneto-optic constants of hcp and fcc Co films*. Physical Review B, 1997. **56**(5): p. 2627-2634.

71. W. Hübner, K.H. Bennemann und K. Bohmer, *Theory for the nonlinear optical response of transition metals: Polarization dependence as a fingerprint of the electronic structure at surfaces and interfaces*. Physical Review B, 1994. **50**(23): p. 17597-17605.
72. A. Kirilyuk, *Nonlinear optics in application to magnetic surfaces and thin films*. Journal of Physics D-Applied Physics, 2002. **35**(21): p. R189-R207.
73. R.P. Pan, H.D. Wei und Y.R. Shen, *Optical second-harmonic generation from magnetized surfaces*. Physical Review B, 1989. **39**(2): p. 1229-1234.
74. Y.R. Shen, *Principles of nonlinear optics*. Wiley classics library. NJ : Wiley.2003.
75. U. Conrad, Statische und dynamische Untersuchungen ultradünner Metallfilme mit optischer Frequenzverdopplung und nichtlineare Mikroskopie, Dissertation, Freie Universität Berlin, Freie Universität Berlin Universitätsbibliothek, 2010
76. A. Melnikov et al., *Ultrafast dynamics at lanthanide surfaces: microscopic interaction of the charge, lattice and spin subsystems*. Journal of Physics D-Applied Physics, 2008. **41**(16): p. 15.
77. J.-C. Diels und W. Rudolph, *Ultrashort laser pulse phenomena fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale*. 2. ed. ed.: Elsevier.2006.
78. A.E. Siegman, *Lasers*. 1. [Dr.] ed. University science books. Oxford Univ. Pr.1986.
79. I. Radu et al., *Laser-Induced Magnetization Dynamics of Lanthanide-Doped Permalloy Thin Films*. Physical Review Letters, 2009. **102**(11).
80. U. Bovensiepen et al., *Sudden jump of the Curie temperature at the coalescence of Co islands on Cu(001)*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1999. **192**(3): p. L386-L390.
81. W.A. Jesser und J.W. Matthews, *Pseudomorphic deposits of cobalt on copper*. Philosophical Magazine, 1968. **17**(147): p. 461-473.
82. L. Gonzalez et al., *Experimental and theoretical study of Co adsorbed at the surface of Cu: Reconstructions, charge-density waves, surface magnetism, and oxygen adsorption*. Physical Review B, 1981. **24**(6): p. 3245-3254.
83. I.E. Radu, Ultrafast Electron, Lattice and Spin Dynamics on Rare-Earth Metal Surfaces, Dissertation, Freie Universität Berlin, Freie Universität Berlin Universitätsbibliothek, 2006
84. M. Sultan, Ultrafast magnetization dynamics of lanthanide metals and alloys, Dissertation, Freie Universität Berlin, Freie Universität Berlin Universitätsbibliothek, 2012
85. S. Sotier und S. Sotier, *Schwingquarz — Schichtdickenmessung*. Vakuum in Forschung und Praxis. **4**(3): p. 182-188.
86. O. NanoTechnology, *Instruction Manual UHV Evaporator EFM 2/3/3s/4*.

- 
87. U. Conrad et al., *Phase effects in magnetic second-harmonic generation on ultrathin Co and Ni films on Cu(001)*. Physical Review B, 2001. **63**(14).
  88. E.D. Palik, *Handbook of optical constants of solids*. [Nachdr.] ed.: Acad. Press.2005.
  89. J. Fassbender et al., *Oscillatory Surface In-Plane Lattice Spacing during Growth of Co and of Cu on a Cu(001) Single Crystal*. Physical Review Letters, 1995. **75**(24): p. 4476-4479.
  90. V. Jähnke et al., *SHG investigations of the magnetization of thin Ni and Co films on Cu(001)*. Applied Physics B, 1999. **68**(3): p. 485-489.
  91. B. Bourguignon et al., *On the anisotropy and CO coverage dependence of SHG from Pd(111)*. Surface Science, 2002. **515**(2–3): p. 567-574.
  92. J. Lahtinen, J. Vaari und K. Kauraala, *Adsorption and structure dependent desorption of CO on Co(0001)*. Surface Science, 1998. **418**(3): p. 502-510.
  93. H.W.K. Tom et al., *Surface Studies by Optical Second-Harmonic Generation: The Adsorption of O<sub>2</sub>, CO, and Sodium on the Rh(111) Surface*. Physical Review Letters, 1984. **52**(5): p. 348-351.
  94. X.D. Zhu et al., *Coverage dependence of surface optical second-harmonic generation from CO/Ni(110): Investigation with a nonlinear-interference technique*. Physical Review B, 1991. **43**(14): p. 11571-11580.
  95. M.E. Bridge, C.M. Comrie und R.M. Lambert, *Chemisorption studies on cobalt single crystal surfaces: I. Carbon monoxide on Co(0001)*. Surface Science, 1977. **67**(2): p. 393-404.

---



# Veröffentlichungen

J. Wieczorek et al., *Competition of spin currents and spin-flip scattering in ultrafast magnetization dynamics of Co/Cu(001) analyzed by complex time-resolved MOKE*. Physical Review B, 2015. **92**: p. 174410

A. Eschenlohr et al., *Role of spin-lattice coupling in the ultrafast demagnetization of Gd<sub>1-x</sub>Tb<sub>x</sub> alloys*. Physical Review B, 2014. **89**(21).



# Danksagung

Als erstes möchte ich mich bei Prof. Dr. Uwe Bovensiepen für die Betreuung und die Möglichkeit zur Promotion in seiner Arbeitsgruppe bedanken. Mein Dank gilt zudem Dr. Nicolas Bergéard und Dr. Andrea Eschenlohr für die Zusammenarbeit an den Experimenten, der Auswertung der Ergebnisse und zahlreichen Diskussionen, ohne deren Hilfe diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre. Dr. Andrea Eschenlohr möchte ich zusätzlich auch noch für das Korrektur lesen meiner Arbeit und die vielen nützlichen Anmerkungen danken. Weiterhin danke ich Dr. Alexander Tarasevitch für den Aufbau und die Betreuung des Lasersystems.

Des Weiteren danke ich Tim Wehling und Malte Rösner für die Rechnungen der Bandstruktur mittels Dichtefunktionaltheorie und Boris Weidtmann für die Erweiterung des Programmes des Zwei-Temperatur-Modells.

Für die Hilfe bei technischen Fragestellungen und Konstruktionen danke ich Michael Bieske und für die organisatorische Unterstützung aller Art geht mein Dank an Christina Boese.

Weiterhin Danke ich allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Bovensiepen für zahlreiche Diskussionen, Ideen und Unterstützungen dieser Arbeit. Der Umbau des Labors und der Umzug des Experimentes von der FU-Berlin wäre ohne die Hilfe der Arbeitsgruppe nicht möglich gewesen.

Vor allem möchte ich mich aber bei meiner Familie bedanken, die mich während dieser Zeit immer unterstützt haben und mich wieder aufgebaut haben, wenn es mal nicht so lief, wie von mir erhofft.

**Danke!**

